



# Paramétrisation des processus physico-chimiques de formation des nuages et étude de leurs impacts sur l'évolution de la composition chimique atmosphérique

François Champeau

## ► To cite this version:

François Champeau. Paramétrisation des processus physico-chimiques de formation des nuages et étude de leurs impacts sur l'évolution de la composition chimique atmosphérique. Océan, Atmosphère. Université Blaise Pascal - Clermont-Ferrand II, 2007. Français. NNT : 2007CLF21748 . tel-00717866

**HAL Id: tel-00717866**

**<https://theses.hal.science/tel-00717866>**

Submitted on 13 Jul 2012

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Numéro d'ordre : 1748

**UNIVERSITE BLAISE PASCAL**

(U.F.R. de Recherche Scientifique et Technique)

**ECOLE DOCTORALE DES SCIENCES FONDAMENTALES**

***N° : 529***

***THESE***

présentée pour obtenir le grade de

***DOCTEUR D'UNIVERSITE***

(Spécialité : Physique de l'atmosphère)

***PAR***

***François CHAMPEAU***

***Diplômé d'Etudes Approfondies***

**Paramétrisation des processus physico-chimiques de formation  
des nuages et étude de leurs impacts sur l'évolution de la  
composition chimique atmosphérique**

***Soutenue publiquement le 23 mai 2007, devant la commission d'examen***

Président	Sylvie Cautenet
Rapporteur	Bernard Aumont
Rapporteur	Jean-Pierre Chaboureau
Examineur	Andréa Flossmann
Examineur	Jean-Pierre Pinty
Directeur de thèse	Nadine Chaumerliac
Co-directeur de thèse	Maud Leriche



# Remerciements

Je souhaite exprimer ma sincère reconnaissance à tous ceux qui, en m'apportant leur aide, leurs conseils ou leur écoute, m'ont permis de mener à bien ce travail. Je tiens à remercier très chaleureusement ma directrice de thèse, Nadine Chaumerliac, qui s'est toujours montrée disponible. Ses conseils m'ont constamment accompagné et ont été d'un grand soutien. Je remercie également ma co-directrice de thèse Maud Leriche, qui a su m'expliquer les principes de la chimie multiphase et mettre en valeur les résultats de mes recherches en améliorant la clarté des raisonnements scientifiques développés. Ses encouragements m'ont bien épaulé et insufflé la force de persévérer.

Je suis sensible à la présence au sein du jury du Professeur Sylvie Cautenet, présidente de ce jury, qui fut une de mes enseignantes durant mon cursus universitaire et qui n'est pas étrangère à l'opportunité que j'ai eu de poursuivre une thèse au LaMP. Je remercie aussi les rapporteurs Bernard Aumont et Jean Pierre Chaboureau qui ont eu la patience de lire attentivement ma thèse. Je remercie également mes examinateurs Andréa Flossmann et Jean Pierre Pinty.

Mes remerciements vont aussi à Vincent Giraud, pour les explications claires et précises sur la microphysique nuageuse dont il m'a fait bénéficier, et pour sa gentillesse. Je remercie le Professeur Albert Benassi qui m'a apporté ses conseils avisés sur les aspects plus mathématiques de la modélisation des processus microphysiques.

Je tiens aussi à remercier :  
A-M. Lanquette qui s'est chargée des aspects plus administratifs que comporte une thèse, Sandra Banson, grâce à laquelle l'informatique n'a pas été un frein à l'avancée des travaux, le Professeur Wolfram Wobrock pour sa disponibilité et son extraordinaire gentillesse, le Professeur Guy Cautenet pour ses conseils et son talent remarquable pour rassurer lors des périodes difficiles. Je n'oublie pas la nouvelle génération de chercheurs et maîtres de conférences récemment recrutés au LaMP que j'ai connu alors qu'ils étaient en fin de thèse : Marie Monier, Olivier Jourdan, et surtout Laurent Deguillaume à qui j'adresse des remerciements appuyés pour sa bonne humeur, sa disponibilité, sa compétence, mais aussi pour les nombreux moments de rire qu'il nous a offerts.

Mes pensées vont aussi à mes collègues thésards avec lesquels j'ai vécu une grande partie de mon temps durant cette thèse : Delphine, et ces passionnantes discussions sur nombres de sujets, tout comme Mathieu, Jamal, un garçon aussi cultivé qu'agréable à écouter, et bien sûr Pascal, plus qu'un collègue, un ami, qui par sa présence a grandement participé à rendre plus agréable ces années de thèse.

Je remercie également mes amis d'ici et d'ailleurs, ils se reconnaîtront, sans lesquels toutes ces années auraient été plus dures, trop dures peut être : Pierre, Sophie, Alain, Sébastien, Fabien, Aurélien, Vincent, Matthieu, Frédéric, Youness, Jean-louis... La liste est trop longue pour les citer tous mais je n'en n'oublie aucun en moi-même et les remercie tous.

Enfin, mes pensées vont à ma famille qui a toujours su être là, depuis l'origine, surtout dans les moments de doutes qui n'ont pas manqué d'arriver. Leur soutien sans faille m'a permis de mener à son terme mon cursus scolaire puis universitaire par la soutenance de cette thèse.



**CHAPITRE 1 : ETAT DE L'ART SUR LA MICROPHYSIQUE ET LA CHIMIE DES NUAGES MIXTES**

<b>1. LA MICROPHYSIQUE NUAGEUSE, CONNAISSANCES STRUCTURELLES</b>	<b>7</b>
1.1. GENERALITE SUR LES NUAGES	7
1.1.1. Les aérosols	7
1.1.2. Les hydrométéores	8
1.1.3. Les nuages	13
1.2. GENERALITES SUR LES PROCESSUS MICROPHYSIQUES DANS LES NUAGES MIXTES	16
1.2.1. Nucléation des gouttelettes et de la glace élémentaire	17
1.2.2. Congélation hétérogène des gouttes et gouttelettes	20
1.2.3. Croissance par dépôt de vapeur, évaporation	20
1.2.4. Croissance par collision/coalescence des hydrométéores dans un nuage mixte	21
1.2.5. Fonte des hydrométéores glacés.	23
1.2.6. Résumé des processus microphysiques en phase mixte	24
<b>2. LA CHIMIE NUAGEUSE</b>	<b>25</b>
2.1. LA CHIMIE MULTIPHASE DES NUAGES CHAUDS	25
2.1.1. Equilibre de Henry	25
2.1.2. Transfert de masse entre les phases gazeuse et aqueuse	27
2.1.3. Réactivité chimique en phase aqueuse	29
2.2. CHIMIE SPECIFIQUE AUX NUAGES MIXTES	32
2.2.1. Rétenion des espèces chimiques lors du givrage	33
2.2.2. Capture d'espèces chimiques lors du dépôt de vapeur sur la glace.	36
2.2.3. Adsorption d'espèces chimiques dans la glace	38
2.2.4. Réactivité chimique à la surface et dans les hydrométéores glacés	39
2.2.5. Incorporation des aérosols dans les hydrométéores glacés	39

**CHAPITRE 2 : PRESENTATION DE M2C2 (MODEL OF MULTIPHASE CLOUD CHEMISTRY), UN MODELE DE CHIMIE MULTIPHASE COUPLE A UN MODULE DE MICROPHYSIQUE**

<b>1. LE MODULE DE MICROPHYSIQUE</b>	<b>42</b>
1.1. INTRODUCTION	42
1.2. LE SCHEMA DE MICROPHYSIQUE CHAUD DE M2C2	43
1.3. CHOIX ET DEVELOPPEMENT D'UNE REPRESENTATION QUASI SPECTRALE : LA DISTRIBUTION GAMMA GENERALISEE	44
1.3.1. Représentation du spectre des hydrométéores un compromis entre réalisme et temps de calcul	44
1.3.2. Grandeurs caractéristiques associées à la distribution gamma généralisée	48
1.3.3. En résumé, le schéma microphysique en phase mixte:	50
1.4. DEVELOPPEMENTS ET PARAMETRISATIONS DES PROCESSUS MICROPHYSIQUES MIXTES DANS M2C2	51
1.4.1. Un schéma à un ou deux moments pour les hydrométéores glacés précipitants	51
1.4.2. Généralités sur les paramétrisations microphysiques des nuages mixtes dans M2C2.	52
1.4.3. Formation de la glace nuageuse élémentaire, appelée 'pristines'	52
1.4.4. Croissance des hydrométéores par dépôt de vapeur et évaporation	53
1.4.5. Croissance des hydrométéores par collision/coalescence	55
1.4.6. Echanges complexes entre types d'hydrométéores	61
1.4.7. Equations prédictives du rapport de mélange et de la concentration en nombre	69
<b>2. LA CHIMIE MULTIPHASE DANS M2C2</b>	<b>73</b>
2.1. CHIMIE MULTIPHASE ASSOCIEE A LA MICROPHYSIQUE CHAUDE	73
2.1.1. Description de la version nuage chaud	73

2.1.2.	Validation du code de chimie multiphase dans la version nuage chaud	74
2.2.	CHIMIE MULTIPHASE ASSOCIEE A PRESENCE DE LA PHASE GLACE	78
2.2.1.	Coefficients de rétention dans M2C2	78
2.2.2.	Prise en compte de la capture des espèces chimiques durant le dépôt de vapeur	79
2.2.3.	Couplage chimie/microphysique dans les nuages mixtes	80

---

## **CHAPITRE 3 : RESULTATS DES SIMULATIONS EN NUAGES MIXTES**

---

<b>3.</b>	<b>DESCRIPTION DES SIMULATIONS</b>	<b>85</b>
3.1.	CADRE DYNAMIQUE	85
3.2.	TYPES D'AEROSOLS ET DE MASSE D'AIR	86
3.3.	PRESENTATION DES SIMULATIONS EFFECTUEES	91
<b>4.</b>	<b>RESULTATS : ETUDE DE LA MICROPHYSIQUE DES NUAGES MIXTES</b>	<b>92</b>
4.1.	RESULTATS DE LA SIMULATION A 1 MOMENT POUR LA NEIGE ET LA NEIGE ROULEE	92
4.2.	RESULTATS DE LA SIMULATION DE REFERENCE : SCHEMA A 2 MOMENTS POUR LA NEIGE ET LA NEIGE ROULEE	94
4.3.	RESULTATS DE LA SIMULATION EN MASSE D'AIR CONTINENTALE	97
4.4.	PRISE EN COMPTE DE LA FORME DES HYDROMETEORES GLACES PRECIPITANTS POUR LA MASSE ET LA VITESSE DE CHUTE	100
4.5.	CONCLUSION	102
<b>5.</b>	<b>RESULTATS : ETUDE DE LA CHIMIE MULTIPHASE ASSOCIEE A LA MICROPHYSIQUE MIXTE</b>	<b>104</b>
5.1.	IMPACT DE LA PHASE GLACE SUR LA CHIMIE NUAGEUSE	104
5.1.1.	Impact de la phase glace sur le pH des gouttelettes	104
5.1.2.	Impact de la taille des gouttes de nuage et de pluie sur le pH	106
5.1.3.	Impact de la géométrie complexe des cristaux sur le pH	107
5.1.4.	Impact sur les acides forts : $\text{HNO}_3$ et $\text{H}_2\text{SO}_4$	108
5.1.5.	Impact de la microphysique mixte sur l'acide formique et le radical OH	117
5.2.	IMPACT DU TYPE DE MASSE D'AIR : MARITIME VERSUS CONTINENTALE	126
5.2.1.	Impact du type de masse d'air et de la rétention des gaz sur la redistribution des espèces chimiques par la microphysique	126
5.3.	CONCLUSION	132

---

## **CONCLUSION ET PERSPECTIVES**

---

### **ANNEXE 1 : IMPACT DU CHANGEMENT DE DISTRIBUTION DE LA PLUIE SUR UN NUAGE CHAUD.**

---

### **ANNEXE 2 : LISTE DES SYMBOLES.**

---

### **ANNEXE 3 : RECAPITULATIF DES TAUX MICROPHYSIQUES DANS M2C2.**

---

### **BIBLIOGRAPHIE**

---

*A mes parents*



## **Introduction générale**

Les nuages sont le siège des principaux processus de redistribution des gaz traces entre les différentes couches de l'atmosphère (Dickerson et al., 1987), ainsi que le lieu privilégié de la réactivité chimique (Lelieveld et Crutzen, 1990). Ils couvrent en permanence environ la moitié de la surface terrestre, et sont mesurés par des satellites d'observation, comme ceux des récentes missions CloudSat et CALIPSO (Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observation) qui vont permettre de restituer une vue tridimensionnelle des nuages. De plus, environ 60% des nuages sont mixtes (Hegg., 2001), c'est à dire constitués de glace et d'eau. Les nuages mixtes sont donc prépondérants et la présence de glace a des incidences sur leurs propriétés fondamentales.

La présence de la glace modifie le bilan radiatif des nuages (Ackerman et al., 1988 ; Ackerman, 1988 ; Martin et al., 2001 ; Liu et al., 2003 ; Toon et al., 1989). Les cristaux de glace, de par leur taille, leur géométrie complexe, leur opacité, diffusent différemment des gouttelettes d'eau la lumière solaire incidente et le rayonnement terrestre infrarouge. Les cirrus représentent entre 20 et 50% de la couverture nuageuse terrestre, (Downling et Radke, 1990). Les cirrus sont particulièrement étudiés du point de vue radiatif, à l'aide d'instruments d'observation optique comme le microsatellite POLDER (POLarization and Directionality of the Earth's Reflectances), mais il est impossible pour le moment de déterminer de façon certaine quel est l'effet moyen dominant à cause des multiples rétroactions (Cox, 1985).

La dynamique est aussi modifiée par la présence de la glace (Willoughby et al., 1985 ; Simpson et al., 1965 ; Lord et Lord, 1988). La libération de chaleur latente lors de la croissance par dépôt de vapeur sur la glace étant augmentée de la chaleur latente de congélation par rapport à celle libérée lors de la croissance des gouttelettes par dépôt de vapeur. Ainsi, l'énergie supplémentaire libérée au sein du nuage glacé se répercute sur la dynamique du nuage (Orville et Kopp, 1977 ; Zhang, 1989 ; Cotton et al., 1982). Cette dynamique dépend aussi de la capacité du nuage à former des précipitations, elle-même modifiée par la présence de glace dans les nuages.

Les hydrométéores glacés jouent un rôle primordial dans la formation des précipitations, et plus de 50% de celle-ci sont initiées grâce à la présence de la phase glace, même les nuages inter-tropicaux produisent la majeure partie de leurs précipitations depuis la phase glace (Liu et Curry, 1999). En effet, la présence de la glace permet l'apparition de processus microphysiques favorisant la formation des précipitations (Tao et Simpson, 1993 ; Tao, 2003), tels l'effet Bergeron et, surtout, le givrage, processus spécifiques des nuages mixtes qui sont très efficaces pour favoriser la croissance des hydrométéores.

La présence de glace au sein des nuages modifie aussi les processus chimiques (Crutzen et al., 1999), le lessivage des aérosols (Heusel-Waltrop et al., 2003), la séparation des charges électriques dans les nuages (Sun et al., 2002 ; Tinsley et al., 2001 ; Tinsley et Heelis, 1993), la distribution du contenu en vapeur d'eau dans les nuages (Schiller et al., 1999 ; Gierens et al., 1999 ; Heymsfield et al., 1998), la capacité des nuages à givrer (Rasmussen et al., 2001 ; Thompson et al., 2002). L'ensemble de ces implications se répercute sur la chimie nuageuse, appelée chimie multiphase.

Les effets de la présence de la phase glace dans les nuages sur les aspects dynamiques et précipitations ont été largement étudiés (Rutledge et Hobbs, 1983, 1984 ; Reisner et al., 1998 ;

Thompson et al., 2004, 2006), ce qui n'est pas le cas de la chimie multiphase qui regroupe l'ensemble des réactions chimiques se produisant entre les réactifs en présence au sein des différentes phases du nuage. L'étude de la chimie multiphase nécessite donc de connaître la chimie dans chacune des phases, mais aussi les processus hétérogènes se produisant aux interfaces de ces phases. C'est un domaine encore mal cerné, notamment à cause des difficultés rencontrées pour recueillir des données chimiques *in situ*, les nuages subissant des évolutions rapides, comme les processus microphysiques, les changements de phases qui modifient la composition chimique de l'air et des hydrométéores (Warneck, 2000). De plus, jusqu'à présent, les études ont surtout porté sur la chimie des nuages chauds, c'est-à-dire ne contenant pas d'hydrométéores glacés. Or, les nuages mixtes sont prépondérants (Hegg, 2001) grâce à la présence, jusqu'à très basse température, de l'ordre de  $-40^{\circ}\text{C}$ , de l'eau liquide à l'état surfondue.

La photochimie, qui joue un rôle important dans la chimie multiphase (Madronich, 1998), est modifiée par la présence de glace dans un nuage, celle-ci modifiant le rayonnement au sein du nuage.

La chimie du nuage mixte dépend de la répartition des hydrométéores entre les phases. A l'échelle de l'hydrométéore, la glace affecte la réactivité des espèces, soit en les piégeant au sein du cristal, soit en offrant la possibilité aux réactions hétérogènes de se produire proche de la surface, dans une couche de transition pseudo liquide, aspect qui reste encore peu exploré. La répartition de l'eau entre les différents types d'hydrométéores conduit ainsi à modifier directement la redistribution des espèces chimiques, mais aussi la dynamique du nuage. Les caractéristiques fines de la microphysique du nuage vont donc se répercuter jusqu'à l'échelle du nuage et du système nuageux en modifiant la capacité du nuage à précipiter ou non, ainsi que la chimie multiphase.

Les espèces chimiques ont généralement une solubilité très différente dans la phase aqueuse et la phase glacée, l'acide chlorhydrique est 3300 fois plus soluble dans l'eau que dans la glace (Voisin, 1998), malheureusement, les données sur l'équilibre thermodynamique des espèces chimiques entre la phase gazeuse et glacée sont rares. Dans la glace, la réactivité chimique est très atténuée, l'état solide s'opposant bien plus aux déplacements des molécules que l'état liquide. Cependant, la diffusion des espèces chimiques à l'intérieur du cristal de glace n'est pas nulle, et elle est très variable d'une espèce à une autre, 50 fois plus rapide pour l'acide nitrique que l'acide chlorhydrique (Thibert, 1996). La lenteur de la diffusion des espèces dans la glace est souvent considérée comme un facteur limitant devant la durée de vie des hydrométéores glacés.

Les mécanismes microphysiques spécifiques des nuages mixtes sont accompagnés de mécanismes chimiques totalement originaux par rapport à la chimie des nuages chauds. Le givrage des hydrométéores liquides sur les particules de glace est un mécanisme rapide, aboutissant à la capture au sein du cristal formé d'une fraction des espèces chimiques volatiles contenues dans l'hydrométéore liquide d'origine (Iribarne et al., 1983), alors que la partie restante est expulsée dans la phase gazeuse. Ce dégazage dépend de la nature des espèces chimiques en solution et des conditions de croissance (Jaccard et Levi., 1961 ; DeMicheli et Iribarne, 1963 ; Iribarne et Pyshnov, 1990), mais la vitesse de congélation fait que la quantité restant piégée dans le cristal n'est pas conforme à l'équilibre thermodynamique. Les espèces non volatiles, telles le chlorure de sodium, restent entièrement dans l'hydrométéore durant sa congélation. On appelle coefficient de rétention la fraction de l'espèce chimique considérée retenue au sein de l'hydrométéore durant le givrage par rapport à la quantité totale présente dans la goutte d'eau avant sa congélation. Il est par définition compris entre zéro et un : zéro si l'intégralité de l'espèce chimique dégaze lors de la congélation, un si la totalité de l'espèce reste piégée dans l'hydrométéore glacé formé.

Lors de la croissance par dépôt de vapeur des hydrométéores glacés, une partie des espèces chimiques présentes dans l'atmosphère peut être capturée, puis piégée à l'intérieur du cristal en croissance. Ce mécanisme de capture porte le nom de cocondensation ou encore burial. Il est proportionnel à la concentration dans la phase gazeuse de l'espèce chimique considérée, c'est pourquoi l'incorporation directe des espèces à constante de Henry effective très élevée (très solubles dans l'eau) par cocondensation est négligeable, à cause de leur faible concentration dans la phase gazeuse (Voisin et al., 2000). La capture d'espèces chimiques sur la neige par cocondensation est moins efficace que sur les gouttes (Diehl et al., 1996), plusieurs études de laboratoire, menées sur le sujet ont montré que la cocondensation dépend de l'espèce chimique, de la température, de la structure cristalline de la glace en croissance, de la pression partielle de l'espèce et de l'acidité de la surface (Clapsaddle et Lamb., 1989 ; Valdez et al., 1989). Yin et al. (2002) définissent le coefficient  $\beta$  appelé 'burial efficiency', ou coefficient de cocondensation. Si  $\beta=1$ , l'ensemble des molécules se déposant sur la glace sont piégées, si  $\beta < 1$ , cela signifie que les forces de liaison permettant à l'espèce chimique de rester sur la glace sont faibles, ce qui permet la désorption. Ce coefficient est proportionnel au rapport entre le temps de résidence de la molécule à la surface de la glace, et le temps que va mettre le dépôt de vapeur pour recouvrir cette molécule, et ainsi la piéger. Ullerstam et al. (2005) ont montré que les cristaux de glace en croissance piègent bien plus efficacement l'acide nitrique que des cristaux à l'équilibre thermodynamique, la désorption étant inhibée par un taux de croissance par dépôt de vapeur élevé.

Plusieurs moyens sont à notre disposition afin d'étudier les processus physico-chimiques au sein des nuages mixtes. En premier, la chimie de laboratoire permet d'étudier précisément et une par une les réactions chimiques entre les espèces présentes dans l'atmosphère sous toutes les phases. La chimie de laboratoire permet aussi de quantifier les processus d'échanges entre les phases (mesures des constantes de Henry, coefficients d'accommodation, coefficients de capture, constantes de dissociation...). Cependant, le nombre d'espèces chimiques dans l'atmosphère est très élevé avec un grand nombre de voies réactionnelles. La chimie de laboratoire permet donc de documenter les bases de données chimiques (cinétique, équilibres...), mais pas d'étudier la chimie multiphase dans sa globalité.

Une deuxième approche consiste en l'expérimentation *in situ*, par la mesure des grandeurs météorologiques, microphysiques et chimiques en simultané au sein d'un nuage, et si possible en plusieurs zones d'un nuage. Les difficultés techniques sont nombreuses, les nuages sont de grande dimension, ils peuvent dépasser 15 km d'épaisseur. De plus, les objets à observer sont de très petite taille, de l'ordre de quelques  $\mu\text{m}$  à mm pour les hydrométéores, et de quelques nanomètres à quelques microns pour les aérosols. L'observation de ces objets nécessite donc le plus souvent du matériel de précision embarqué sur des avions, tels le CVI (Counterflow Virtual Impactor, Noone et al., 1988) qui permet de séparer la phase interstitielle de la phase condensée.

L'observation *in situ* peut aussi se faire depuis le sol à l'aide de RADAR, GPS, LIDAR qui permettent de mesurer de nombreuses quantités telles que l'intensité des précipitations, l'épaisseur optique, le contenu intégré sur la colonne traversée par le faisceau en vapeur d'eau ou autres espèces chimiques, cependant ces méthodes d'observations ne permettent pas d'avoir accès à la physique et à la géométrie fine des aérosols et hydrométéores qui sont si importantes dans la physico-chimie du nuage.

Une approche intermédiaire entre la chimie de laboratoire et l'expérimentation *in situ* est constituée par les expériences en chambres contrôlées, comme la chambre AIDA (Aerosol Interactions and Dynamics in the Atmosphere) en Allemagne (<http://imk->

aida.fzk.de/facility/aidatech.html). Cette chambre permet de contrôler de nombreux paramètres thermodynamiques dans des gammes très larges reconstituant ainsi des conditions difficilement accessibles à l'expérimentation *in situ*. La chimie et les aérosols y sont également contrôlés. Cette chambre permet donc d'effectuer de nombreuses expériences (chimie, microphysique, radiatif...) sur un nuage reconstitué à la demande.

La troisième approche est la modélisation qui permet de représenter d'une façon simplifiée les propriétés physiques et chimiques d'un nuage. Ces modèles permettent d'étudier au sein d'un nuage idéalisé :

- L'évolution microphysique du nuage
- L'évolution chimique multiphase du nuage et les voies réactionnelles principales des espèces chimiques.
- Les nombreuses interactions entre la microphysique et la chimie.
- L'influence des initialisations chimiques et microphysiques sur les propriétés physiques et chimiques du nuage, en faisant de multiples tests de sensibilité.

L'outil numérique utilise en entrées les bases de données produites à l'aide des mesures de laboratoire ainsi que des initialisations microphysiques et chimiques provenant des mesures *in situ* (propriétés physiques et chimiques des aérosols, concentrations chimiques, grandeurs météorologiques de l'air données par les mesures au sol et par les radiosondages, propriétés microphysiques des nuages avec les distributions en nombre et en masse des aérosols et des hydrométéores, leur forme), pour ensuite étudier les interactions complexes entre les différents processus. L'outil numérique permet ainsi d'intégrer les mesures de laboratoire et d'aider à l'interprétation des mesures *in situ*. En cela, il fait le lien entre les mesures de laboratoire et celles de terrain.

La modélisation de la chimie multiphase des nuages mixtes, associant une grande diversité de mécanismes microphysiques et chimiques, est un thème de recherche encore peu exploré, et malgré son importance dans la chimie de l'atmosphère, peu d'études se sont intéressées aux nuages troposphériques mixtes ou alors pour traiter du transport vertical et de la redistribution des espèces chimiques par ces nuages (Barth et al., 2001 ; Yin et al., 2002 ; Audiffren et al., 1999 ; Chen et Lamb, 1990 ; Rutledge et al., 1986 ). Ces études montrent un impact significatif de la présence d'hydrométéores glacés sur la distribution et le lessivage des espèces chimiques. Cependant elles utilisent différentes représentations de l'interaction chimie/hydrométéore glacé, et aucune méthode systématique ne donne d'estimation précise de l'effet de chacune de ces interactions.

Mon travail, dont le but est de documenter la chimie multiphase des nuages mixtes s'inscrit dans ce contexte. Pour ce faire, j'ai été amené à développer la microphysique spécifique aux nuages mixtes dans le modèle de chimie des nuages M2C2 (Model of Multiphase Cloud Chemistry) (Leriche et al., 2003) qui n'était pas prise en compte jusqu'alors dans le modèle, et à coupler ce schéma microphysique avec le module de chimie multiphase existant. J'ai développé la microphysique mixte en utilisant les paramétrisations de la littérature et en me concentrant sur les caractéristiques spécifiques des cristaux (catégories, tailles, formes, vitesses de chute) avec une représentation quasi-spectrale des hydrométéores et des aérosols. D'un point de vue chimique, il a fallu prendre en compte le mécanisme de rétention lors du givrage ainsi que de capture lors de la croissance par dépôt de vapeur des hydrométéores glacés. Ainsi, nous disposons d'un modèle de chimie multiphase couplé à un module de microphysique mixte à deux moments.

Dans le chapitre 1, sont présentées les connaissances structurelles en microphysique et en chimie multiphase des nuages mixtes qui sont utiles pour comprendre la suite de l'exposé. Les

## Introduction

aspects microphysiques et chimiques associés à la présence de la glace sont particulièrement détaillés car ils constituent le thème central de ce travail.

Le second chapitre est consacré au développement du modèle M2C2. La première partie est dédiée à la microphysique alors que la seconde porte sur le module de chimie. Au début de chacune des parties, les paramétrisations microphysiques et chimiques du modèle préexistant sont rapidement décrites. Dans la première partie, les détails de l'incorporation des mécanismes microphysiques associés à la présence de la glace sont exposés, et les choix que j'ai été amené à faire dans les paramétrisations justifiés. La seconde partie porte sur les processus, comme la rétention lors du givrage qui ont été incorporés au module de chimie dans M2C2 pour prendre en compte la présence de la phase glacée, avec l'introduction des coefficients de rétention et de burial. Finalement, le couplage entre le module de microphysique mixte et le module de chimie multiphase est détaillé.

Le chapitre 3 est dédié aux résultats, microphysiques et chimiques, obtenus à l'aide du modèle M2C2 en phase mixte. La première partie présente des tests de sensibilité effectués sur les choix possibles dans les paramétrisations microphysiques du modèle et dans les initialisations des masses d'air. On compare un schéma microphysique tout pronostique à un schéma partiellement diagnostique pour simuler soit un nuage de type maritime soit un nuage de type continental. L'impact de la forme géométrique des cristaux sur l'évolution des divers types de nuage est également discuté. La seconde partie porte sur la chimie, avec l'effet de la prise en compte de la phase glacée sur certaines espèces et grandeurs chimiques en comparant une simulation de nuage mixte de référence à une simulation où les mécanismes microphysiques associés à la phase glace sont artificiellement inhibés. Ensuite, sont présentés de multiples tests de sensibilité chimiques portant sur la nature de la masse d'air, le coefficient de rétention et le coefficient de burial, et les résultats obtenus sont comparés à la littérature.

Finalement, la conclusion permet de faire le bilan de ce travail, ainsi que de proposer les voies intéressantes à explorer à l'aide de ce nouvel outil de modélisation de la physico-chimie des nuages mixtes.



# **Chapitre 1 : Etat de l'art sur la microphysique et la chimie des nuages mixtes**

Dans la troposphère terrestre, environ 60% des nuages sont mixtes (Hegg., 2001). A l'échelle microscopique, l'évolution de ces nuages est régie par de nombreux mécanismes microphysiques et chimiques faisant intervenir l'eau sous ses trois phases, mais aussi la phase gazeuse atmosphérique, les aérosols, la chimie en phase gazeuse et aqueuse, et le rayonnement solaire. Ce premier chapitre a pour but d'introduire les processus physiques et chimiques se déroulant dans les nuages mixtes. La première partie porte sur la physique des nuages mixtes avec, en introduction, une présentation des acteurs principaux, les aérosols, qui sont indispensables pour former les hydrométéores, eux-mêmes, dans leur diversité, formant les nuages. Enfin, je présente les principaux processus microphysiques régissant l'évolution des nuages mixtes. La seconde partie de ce premier chapitre porte sur la chimie nuageuse, avec un rappel sur la chimie multiphase des nuages chauds, suivi d'une présentation plus détaillée des spécificités chimiques des nuages mixtes.

## **1. La microphysique nuageuse, connaissances structurelles**

### ***1.1. Généralité sur les nuages***

#### **1.1.1. Les aérosols**

Avant de développer les caractéristiques des nuages, nous devons nous intéresser à leurs précurseurs, ces particules qui permettent aux gouttelettes d'eau et/ou cristaux initiaux d'apparaître : les particules aérosols.

Les aérosols sont des particules de très petites tailles en suspension dans l'air. Ils se classent en deux types d'origine : les premiers, les aérosols primaires, sont directement émis dans l'atmosphère. Ce sont les poussières soulevées par le vent, provenant d'éruptions volcaniques, mais aussi des cristaux de NaCl provenant de l'évaporation des embruns. Le second type est constitué par les aérosols secondaires qui se forment directement dans l'atmosphère depuis la phase gazeuse par des processus physico-chimiques (nitrates, sulfates...). A la fin des années 90, Andreae et al. (1997), Pandis et Seinfeld (1998) estiment que en masse, 90% des aérosols sont d'origine naturelle et 10% d'origine anthropique. En première approche, l'action anthropique semble, sinon négligeable, au moins faible par rapport aux émissions naturelles d'aérosols. Cependant, si on s'intéresse à l'origine des aérosols en fonction de leur taille on s'aperçoit que l'essentiel des aérosols fins sont d'origine anthropique, lesquels sont prépondérants pour les concentrations en sulfates, en carbone particulaire, et certains métaux lourds.

L'observation des spectres d'aérosols a permis de les classer en trois types de tailles distincts : les plus petits sont les noyaux d'Aitken, dont le rayon évolue de 0.001 à 0.1  $\mu\text{m}$ , ils sont formés par conversion gaz particule. En nombre, ce mode est le plus important. Cependant, à cette échelle de taille, le mouvement Brownien est important et conduit rapidement à la coagulation (agglomération de particules suite à des collisions sous l'effet du mouvement Brownien) des particules d'Aitken qui grossissent et passent dans le second type d'aérosols : le mode d'accumulation (de 0.1 à 1  $\mu\text{m}$ ). Ces aérosols sont suffisamment grands pour servir de noyaux de condensation dont ils représentent la principale source. Ils proviennent aussi de l'évaporation des gouttelettes. Leur durée de vie et de l'ordre d'un jour à une semaine. Si cette durée de vie est surtout dictée par le lessivage par la pluie lors du passage des ces aérosols dans un nuage précipitant, les aérosols du mode d'accumulation sont aussi éliminés, plus lentement, par sédimentation sèche. Enfin, le troisième type d'aérosols est constitué de grosses particules ( $> 1\mu\text{m}$ )

qui sont générées mécaniquement par le vent, et dont la durée de vie est très courte, de par leur vitesse de sédimentation plus élevée. Ils peuvent servir de noyaux de condensation, tels les gros aérosols en sel issus de la mer. Il faut noter que le troisième type de particule a une genèse indépendante des deux premiers. La figure (1) schématise cette distribution trimodale des aérosols et les mécanismes de formation, de croissance et d'élimination associés.

Il existe une grande diversité dans la nature des aérosols, selon leur origine, maritime ou continentale, rurale ou urbaine. On parle de mélange externe lorsqu'il existe, pour une gamme de taille, des aérosols de nature chimique différentes en mélange, et de mélange interne pour une gamme de taille, lorsque chaque aérosol est constitué de plusieurs espèces chimiques, par exemple du sel de mer avec une couche d'espèces organiques autour. De plus les aérosols évoluent pendant leur parcours. En effet, les aérosols du mode d'accumulation restent assez longtemps dans l'atmosphère pour passer plusieurs fois dans des gouttelettes nuageuses, dans lesquelles ils peuvent être mélangés à d'autres aérosols, et où leur composante soluble peut réagir chimiquement, ainsi, les aérosols sont modifiés par les nuages.

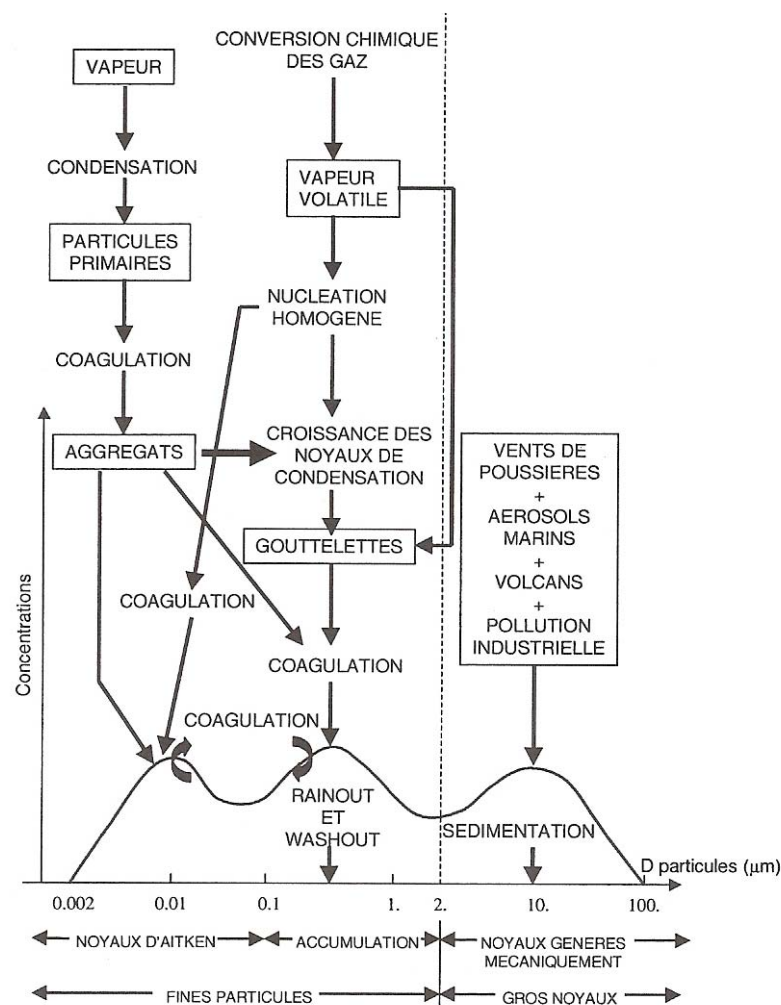


Figure 1 : Distribution trimodale des aérosols atmosphériques, d'après Whitby, 1978.

### 1.1.2. Les hydrométéores

Le terme hydrométéore désigne l'ensemble des particules constituées essentiellement d'eau en phase liquide ou glacée en suspension dans l'atmosphère. Pour se former, les hydrométéores ont besoin d'un air saturé en humidité au dessus de leur phase, cet air saturé peut s'obtenir par refroidissement isobarique (refroidissement nocturne de l'air à proximité du sol responsable des



brumes matinales), ou par refroidissement associé à une détente adiabatique de la masse d'air, c'est-à-dire sans échange de chaleur, produit par le passage d'un front, le soulèvement orographique de l'air, la présence d'ondes de gravité ou encore par l'instabilité d'une colonne d'air. Les hydrométéores liquides ont la particularité de pouvoir rester sous cette phase même à des températures négatives, on parle dans ce cas d'eau surfondue. C'est un état métastable qui peut cesser par choc, contact, ou même spontanément. L'eau surfondue peut exister jusqu'à une température d'environ  $-40^{\circ}\text{C}$ .

- Hydrométéores liquides :

La formation spontanée de petites gouttelettes par augmentation de la sursaturation, appelée nucléation homogène, nécessite des sursaturations impossibles à atteindre dans la troposphère. La formation des gouttelettes nuageuses nécessite donc la présence de particules d'aérosols sur lesquelles la vapeur d'eau peut se condenser à des sursaturations moindres, on parle alors de nucléation hétérogène. Ce processus sera détaillé plus loin (cf. 1.2.1, chapitre 1).

Une fois créés, les hydrométéores liquides vont croître par dépôt de vapeur et par collision/coalescence. Un nuage formé à partir d'aérosols gros et peu nombreux favorisera la croissance des gouttelettes par rapport à un nuage formé à partir d'un plus grand nombre de petits aérosols pour un même cadre dynamique. En effet, la même quantité de vapeur d'eau est disponible dans les deux cas, mais le moins grand nombre de gouttelettes du premier cas favorise leur croissance par dépôt de vapeur, donc leur vitesse de chute et leur croissance par collision/coalescence. Ainsi les nuages maritimes, formés sur un faible nombre de cristaux de sel, ont des taux de précipitations plus élevés que les nuages continentaux. Au dessus d'un diamètre de  $50\mu\text{m}$ , la vitesse de chute des gouttelettes d'eau est suffisamment importante pour qu'on parle de gouttes de pluie. La forme des gouttelettes peut être considérée comme parfaitement sphérique pour un diamètre inférieur à  $280\mu\text{m}$ , au dessus et jusqu'à  $1000\mu\text{m}$  ce sont des sphères légèrement déformées, au dessus de  $1000\mu\text{m}$ , les gouttes sont très aplaties (Pruppacher et Klett., 1978).

- Hydrométéores glacés :

Les hydrométéores glacés peuvent apparaître par nucléation hétérogène mais aussi par nucléation homogène. On peut distinguer deux types de nucléations homogènes : le passage directe de la vapeur d'eau à des cristaux, mais cette nucléation n'existe pas dans la troposphère, et la nucléation homogène de gouttelettes surfondues ou glaciation homogène. Cette dernière est très dépendante de la température, elle est négligeable au dessus de  $-30^{\circ}\text{C}$  et est prépondérante à  $-40^{\circ}\text{C}$  (Pruppacher, 1995).

L'autre type de nucléation, dite nucléation hétérogène, nécessite la présence d'une impureté sur laquelle se développe le cristal de glace élémentaire. Les impuretés capables d'aboutir à la formation de ces cristaux sont appelées IN (pour Ice Nuclei). La nucléation hétérogène des cristaux de glace peut suivre plusieurs voies :

- La condensation de la vapeur d'eau sous forme liquide sur l'IN suivie de congélation
- La condensation de la vapeur directement sous forme solide sur l'IN
- La collision d'un IN avec une gouttelette surfondue entraînant sa congélation.

La nucléation hétérogène des cristaux de glace primaire sera discutée plus en détail par la suite (cf. 1.2.1).

Les hydrométéores ainsi formés vont croître par dépôt de vapeur et collision/coalescence. Une caractéristique importante de la glace par rapport à l'eau liquide est d'avoir une pression de vapeur saturante moins élevée, or la présence fréquente et simultanée de gouttelettes surfondues et de cristaux de glace permet de très

fortes sursaturation au dessus de la glace, bien au delà de 120%. Ainsi, le dépôt de vapeur d'eau sur la glace peut être intense, même si la vapeur d'eau est en sous saturation au dessus de l'eau liquide, dans ce cas nous assistons à une évaporation des gouttelettes au profit des cristaux de glace, mécanisme connu sous le nom d'effet Bergeron. Notons qu'un mécanisme similaire existe entre les gouttes de grande taille et celle de petites taille, plus instables (pour lesquels la pression de vapeur saturante est plus élevée), qui s'évaporent au profit des plus grandes gouttes.

Lors de leur croissance par dépôt de vapeur, les cristaux ne croissent pas sphériquement, mais suivant des axes de croissances spécifiques aux propriétés cristallographiques de la glace. Ces propriétés sont variables en fonction de la température et du niveau de sursaturation.

CODE	SYMBOL	TYPICAL FORMS	Code	Type de particules
1			1	Assiettes, plaquettes hexagonales
2			2	Etoiles
3			3	Colonnes, combinaison de colonnes « Bullets rosettes »
4			4	Aiguilles, combinaison d'aiguilles
5			5	Dendrites spatiales, combinaison de cristaux « plumeux »
6			6	Combinaison de colonnes et de plaquettes
7			7	Particules irrégulières, agrégats irréguliers de cristaux microscopiques
8			8	Graupel « Soft Hail »
9			9	« Ice Pellets »
0			0	Grêle

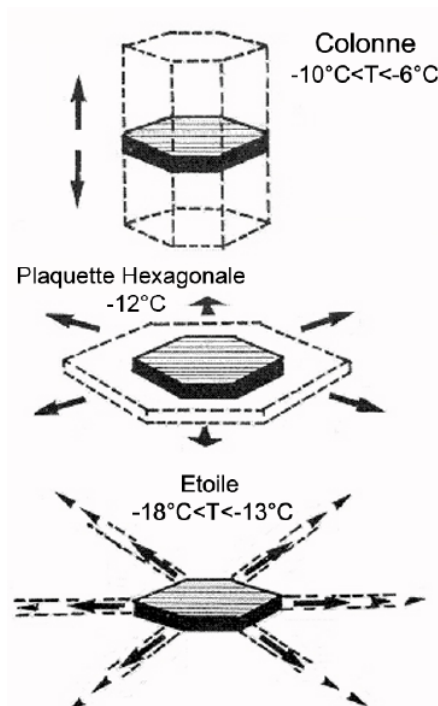
**Figure 2 : Classification des types de cristaux de glace selon Mason. (1971).**

La figure (2) présente les principaux types de cristaux que l'on rencontre dans les nuages selon Mason (1971) :

- Les plaquettes (1) : Ces monocristaux ont une épaisseur très faible comparée à leur largeur, d'où leur nom de plaquettes ou d'assiettes.
- Les étoiles (2) : Ce type de monocristal possède 6 axes de symétrie, il est constitué de 6 dendrites qui se développent dans un même plan autour d'un élément central. Plus la saturation est élevée, plus ces dendrites sont ramifiées. Les étoiles se forment entre  $-13^{\circ}\text{C}$  et  $-18^{\circ}\text{C}$ . Elles peuvent avoir des dimensions variables, allant jusqu'à 8mm.
- Les colonnes (3) : Les colonnes sont des monocristaux de base hexagonale dont le rapport longueur/largeur est compris entre 1 et 5. Elles se forment à des températures comprises entre  $-10^{\circ}\text{C}$  et  $-6^{\circ}\text{C}$ .
- Les aiguilles (4) : Ce sont des monocristaux en petits bâtonnets pouvant avoir une section hexagonale. Le rapport longueur/largeur est supérieur à 5. Elles se forment à des températures relativement élevées entre  $-4$  et  $-8^{\circ}\text{C}$ .

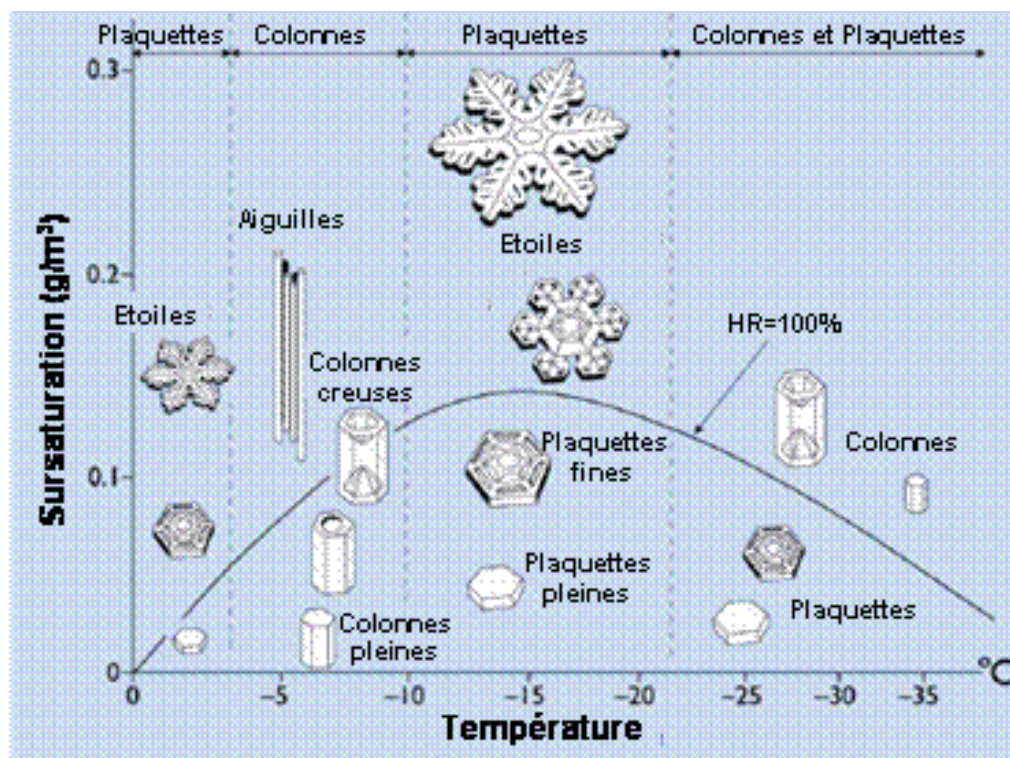
- Les 'bullet rosettes' (3) : Ce sont des cristaux composites qui ressemblent à un assemblage de colonnes reliées au centre par la gouttelette gelée initiale.
- Les dendrites sur monocristaux (5) : Ce type de cristaux composites se développe entre  $-16^{\circ}\text{C}$  et  $-12^{\circ}\text{C}$  dans les nuages mixtes. Un cristal primaire collecte des gouttelettes d'eau surfondue, des dendrites se développent ensuite à la surface de cet hydrométéore glacé, mais elles ne se développent pas dans la même direction que le cristal servant de base. Selon Hallet (1964) si la température du substrat et en dessous de  $-10^{\circ}\text{C}$ , les gouttelettes qui gèlent ne tendent pas à prendre la même direction que le dit substrat.
- Les assemblages colonnes plaquettes (6) : Ce sont des cristaux dont la croissance est dans un premier temps de type colonne, suivie d'une croissance de type plaquette.
- Les agrégats irréguliers (7) : Ils peuvent avoir des formes extrêmement variées. Les cristaux primaires peuvent s'agréger entre eux ou avec d'autres agrégats pour former des cristaux très complexes. En raison de cette grande complexité et de la diversité de leur forme on considère souvent ces types de cristaux comme des sphéroïdes avec des inclusions d'air.
- Les 'graupel' ou neige roulée (8) : Lors des premières étapes du givrage, tant que la particule originale est encore identifiable, l'hydrométéore est qualifié de 'lightly' ou 'densely' 'rimed crystal'. Quand le givrage est tel qu'il n'est plus possible de reconnaître l'hydrométéore de base, on parle de 'graupel', 'soft hail' ou 'snowpellet'. Ces cristaux sont d'apparence blanchâtre et opaque qui vient de la présence d'un grand nombre d'inclusion d'air dans leur structure. Pour les particules encore plus givrées ayant des formes coniques, arrondies ou irrégulières ont donne le nom de 'small-hail'.
- Les 'pellets'(9) : Ce sont des hydrométéores très givrés, de forme irrégulière, intermédiaire entre la neige roulée et les grêlons.
- Les grêlons (0) : Ce sont les hydrométéores les plus densément givrés, de forte densité avec de faibles inclusions d'air. Ils ont une grande vitesse de chute et peuvent atteindre des tailles très supérieures à tous les autres hydrométéores (plusieurs cm), provoquant parfois des dégâts importants.

Il existe 3 types de croissance pour un cristal de glace élémentaire hexagonal : la croissance par les faces, aboutissant à des colonnes, la croissance des six arrêtes, donnant des plaquettes, et la croissance des six pointes donnant des étoiles, figure (3).



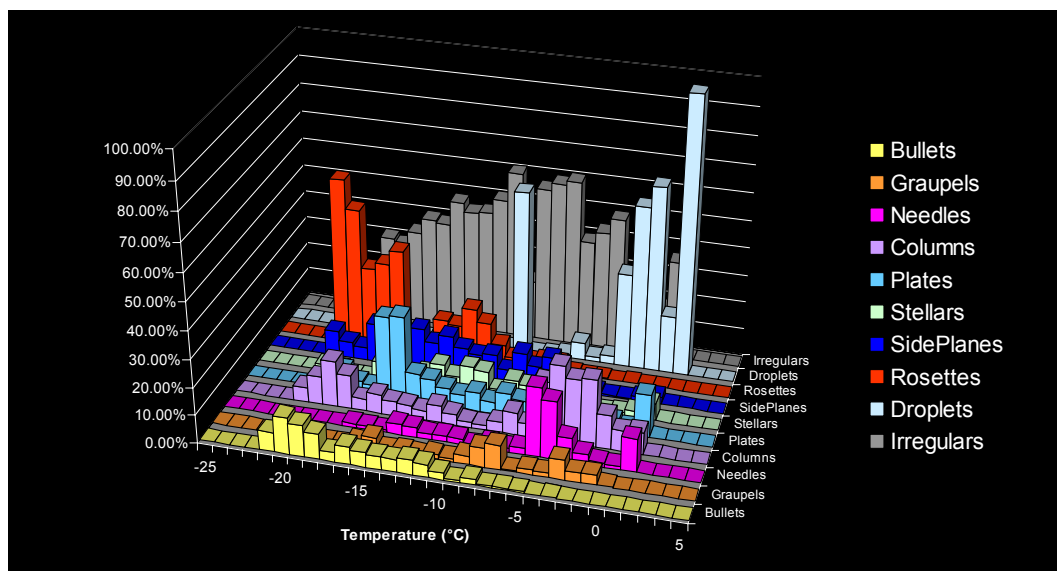
**Figure 3 : Les trois types de croissance d'un cristal hexagonal, d'après Delanoë, 2005 (Delanoë, pp 25 chap II.)**

La figure (4) récapitule les types de cristaux primaires formés en fonction de la température et de la sursaturation.



**Figure 4 : Forme des cristaux de glace en fonction de la température et de la sursaturation. Libbrecht, 2005 adapté de Furukawa, 1982.**

La figure (5) présente une statistique des formes de cristaux observées en fonction de la température avec la sonde CPI. (Cloud Particle Imager) à partir de mesures aéroportées effectuées au cours de l'expérience ASTAR en 2004 en régions Arctiques (Lefevre, 2007). On constate la présence de nombreuses gouttelettes surfondues jusqu'à environ  $-10^{\circ}\text{C}$ . Aux températures faiblement négatives, les aiguilles et les colonnes sont les cristaux les plus courants, alors qu'aux températures les plus froides de l'échantillonnage (en dessous de  $-15^{\circ}\text{C}$ ), les rosettes deviennent les plus fréquentes. Cependant, on observera que hormis à ces températures les plus froides, les cristaux irréguliers dominent largement, ceci est dû à la complexité des mécanismes de formation des cristaux. En effet, la forme des hydrométéores glacés provient des conditions thermodynamiques de l'air qui les entoure, mais aussi de celles des masses d'air qu'ils ont traversé depuis leur formation. On comprend donc la diversité des formes rencontrées à travers la complexité des mécanismes microphysiques qui se produisent dans les nuages mixtes aboutissant à leur formation et à leurs transformations.



**Figure 5 : Forme observée des hydrométéores en fonction de la température. Lefevre, 2007.**

Finalement, au sein d'un nuage mixte, la phase glace présente une grande diversité et une grande complexité dans les cristaux qui la compose (Pruppacher et Klett., 1978). Leur forme, leur géométrie, leur degré de givrage leur confèrent des propriétés thermodynamiques, morphologiques et aérodynamiques très différentes, toutes importantes pour le lessivage des espèces chimiques.

### 1.1.3. Les nuages

Les nuages se définissent comme un ensemble de particules en suspension dans l'air, en une densité suffisamment élevée pour qu'ils soient visibles à l'œil nu. Ils peuvent être constitués de grains de poussière (nuages de sable naissant dans les régions désertiques, nuages de cendre des éruptions volcaniques), mais le plus souvent, les nuages sont essentiellement constitués d'eau, en phase liquide et/ou solide. C'est à ces nuages, dont l'élément prépondérant est l'eau, que nous nous intéressons.

On classe les nuages selon leur type : stratiformes pour les nuages à faibles mouvements verticaux, ou cumuliformes pour les nuages d'instabilité à forts mouvements verticaux. Les nuages se repartissent sur trois étages : ceux de basses couches (en dessous de deux kilomètres d'altitude),

ceux de l'étage moyen (de deux à six ou sept kilomètres d'altitude) et enfin ceux de l'étage supérieur, de six sept kilomètre à l'altitude de la tropopause. Certains nuages peuvent se développer sur plusieurs étages selon leur instabilité (Les Cumulonimbus dépassent facilement les 10 km de développement vertical). Les nuages ont plusieurs origines, ils peuvent être associés à des fronts de perturbations comme de nombreux nuages stratiformes, ils peuvent être provoqués par l'instabilité de la masse d'air, soit par chauffage des basses couches du sol par le soleil, soit par advection d'air froid en altitude déstabilisant l'air chaud situé en dessous (nuages cumuliformes), ils peuvent aussi être formés par forçage orographique, lorsque l'air doit s'élever pour traverser une chaîne de montagnes, cas très fréquent sur le Puy de Dôme, enfin, certains nuages ont une origine purement anthropique, tels les cirrus artificiels que sont les traînées d'avion. Les nuages font l'objet d'un classement qui se rapproche de celui utilisé en biologie, avec des genres subdivisés en espèces elles même divisées en variétés. La figure (6) présente les 10 genres des nuages ainsi que les altitudes auxquelles ils se trouvent. Suit une description de ces 10 genres des nuages.



**Figure 6 : Les principaux types de nuages et leur altitude.**

### ➤ Les nuages cumuliformes

Du moins instable au plus instable, voici un rapide aperçu des nuages cumuliformes les plus fréquents.

- Cirrocumulus (Cc). C'est un nuage appartenant à l'étage supérieur, sa base se situe entre 5 000 et 10 000 m d'altitude avec une épaisseur de l'ordre de 500 m. Il se compose de lamelles, granules, rides, galets, rouleaux. Blanc et de petite taille, il est dépourvu d'ombres propres et se dispose assez régulièrement en un banc, une nappe ou une couche mince dont les éléments sont soudés ou non. Il est constitué de cristaux de glace.
- Stratocumulus (Sc). C'est un nuage appartenant à l'étage inférieur : sa base se situe entre 500 et 2 500 m d'altitude avec une épaisseur de l'ordre de 600 m. Il est composé de dalles, galets, rouleaux, gris ou blanchâtres, ayant presque toujours des parties sombres qui ont pour la plupart une largeur apparente supérieure à 5° ; lorsqu'il arrive que ces éléments se soudent en s'étalant, le stratocumulus prend l'apparence d'une couche continue et bourrelée. Ce nuage ne donne que rarement lieu à des précipitations. Il est constitué la plupart du temps d'eau liquide.



- **Altostratus (As).** C'est un nuage appartenant à l'étage moyen : sa base se situe entre 1 500 et 6 000 m d'altitude et son épaisseur est de l'ordre de 1 500 m. Il se compose de lamelles, galets, rouleaux blancs ou gris, ayant généralement des ombres propres et se disposant assez régulièrement en un banc, une nappe ou une couche dont les éléments, soudés ou non entre eux, ont une largeur apparente comprise approximativement entre 1° et 5°, ce morcellement donne assez souvent au ciel un aspect pommelé. Ce nuage est constitué de gouttelettes et/ou de cristaux de glace et ne produit pas de précipitations.
- **Cumulus (Cu).** C'est un genre de nuage d'extension verticale variable : aux latitudes tempérées, sa base peut se situer à faible altitude de quelques centaines de mètres à 2000 mètres maximum, tandis que son épaisseur peut aller de 100 mètres à 5000 mètres. Il se développe en amas séparés, aux contours nettement dessinés, qui prennent la forme de mamelons, de dômes ou de tours avec des protubérances arrondies au sommet bourgeonnant, souvent comparé à un chou-fleur. Sa base aplatie est plutôt sombre alors que les parties éclairées par le soleil sont généralement d'un blanc éclatant. Lorsqu'il est de l'espèce congestus, le cumulus peut être précipitant (cumulus congestus). Il est constitué de gouttelettes et/ou de cristaux de glace selon la température et son extension verticale
- **Cumulonimbus (Cb).** C'est un genre de nuage d'extension verticale considérable : aux latitudes tempérées, sa base se situe entre 300 et 3000 m d'altitude avec une épaisseur allant de 5000 à 12000 m, mais aux latitudes tropicales, il peut atteindre et dépasser 17000 m d'altitude. Son apparence est ample et massive, semblable à celle d'une montagne ou d'énormes tours, il s'orne de forts contrastes entre un aspect général foncé et la blancheur des parties du nuage directement éclairées par le soleil. Son sommet s'étale le plus souvent en forme d'enclume, et sa base est très sombre. Dans certains cas, des sommets protubérants en forme de dômes surmontent l'enclume, révélant un phénomène de dépassement de la tropopause. Le cumulonimbus est très souvent porteur d'orages avec éclairs et déclenche toujours des averses, qui peuvent être de grêle ce qui est un critère sûr de distinction entre sa base et celle d'un nimbostratus.

### ➤ Les nuages stratiformes

Du moins élevé au plus élevé en altitude voici les nuages stratiformes courants.

- **Stratus (St).** C'est un genre de nuage appartenant à l'étage inférieur : sa base se situe entre le voisinage de la surface terrestre et 1200 m de hauteur avec une épaisseur de l'ordre de 200 m. Le brouillard peut généralement être considéré comme une forme de stratus ayant atteint la surface du sol. Il est constitué de petites gouttelettes d'eau liquide.
- **Nimbostratus (Ns).** C'est un genre de nuage appartenant à l'étage moyen, mais qui souvent aborde l'étage supérieur et envahit l'étage inférieur : sa base se situe entre 300 et 2000 m d'altitude avec une épaisseur de l'ordre de 3000 m. Il forme une couche dont l'épaisseur est partout suffisante pour masquer complètement le soleil ou la lune, l'aspect de cette couche, caractéristique du mauvais temps non orageux, est rendu flou par des chutes continues de pluie, ou de neige qui atteignent dans la plupart des cas la surface terrestre. Sa base est souvent sombre.
- **Altostratus (As).** C'est un genre de nuage appartenant à l'étage moyen : Sa base se situe entre 1500 et 5000 m d'altitude et son épaisseur est de l'ordre de

2000 m. Il a la forme d'une nappe ou d'une couche grisâtre ou bleuâtre, d'aspect strié, fibreux ou uniforme, couvrant partiellement ou totalement le ciel, et il peut donner lieu à des précipitations. Ce nuage présente souvent des parties suffisamment minces pour laisser voir le soleil ou la lune comme à travers un verre dépoli, il est constitué de gouttelettes et/ou de cristaux de glace.

- Cirrostratus (Cs). C'est un genre de nuage appartenant à l'étage supérieur : sa base se situe entre 4500 et 12000 m d'altitude avec une épaisseur de l'ordre de 500 m. Plus étendu horizontalement que les cirrus, il a la forme d'un voile blanchâtre et transparent, d'aspect fibreux ou lisse, couvrant partiellement ou totalement le ciel et dessinant souvent un halo autour du soleil ou de la lune. ce voile ne peut supprimer les ombres portées et il est parfois si mince que seule l'apparition du halo révèle alors son existence. C'est un nuage constitué de cristaux de glace.
- Cirrus (Ci). C'est un genre de nuage appartenant à l'étage supérieur : sa base se situe entre 6000 et 12500 m d'altitude avec une épaisseur de l'ordre de 300 m. Il est constitué de bancs, de bandes ou de filaments séparés, blancs le plus souvent, qui revêtent un aspect fibreux ou un éclat soyeux, les deux apparences pouvant d'ailleurs se conjuguer. C'est aussi un nuage constitué de cristaux de glace.

Les nuages stratiformes ont une durée de vie plus longue que les nuages cumuliformes, elle peut être de plusieurs jours, alors que ceux de type cumuliforme ont une durée de vie de l'ordre de quelques heures. Enfin, on peut distinguer les nuages précipitants (cumulonimbus, nimbostratus, certains cumulus...) des nuages non précipitants (cirrus, brouillard, bien que ces derniers puissent déposer des gouttelettes au niveau du sol).

Les nuages peuvent être composés uniquement d'eau liquide (la plupart des nuages de basse couche en été), exclusivement de cristaux de glace (cirrus, cirrostratus), mais aussi comporter de l'eau sous ces deux phases condensées (tous les cumulonimbus, tous les nuages des étages inférieur et moyen contenant de la glace), l'eau pouvant rester dans un état métastable liquide jusqu'à près de  $-40^{\circ}\text{C}$ . De plus, l'inertie thermique et la vitesse des agrégats de grande taille, tels que les flocons de neige, de neige roulée ou plus encore la grêle, permet d'observer des hydrométéores glacés à des températures positives. D'un point de vue général, sur terre les nuages mixtes sont les plus répandus (Hegg, 2001), il est donc primordial de les étudier.

### ***1.2. Généralités sur les processus microphysiques dans les nuages mixtes***

Lorsque les phases liquides et solides sont présentes simultanément dans un nuage, on parle de nuage mixte. La microphysique en phase mixte comprend la microphysique chaude, à laquelle il faut ajouter la microphysique associée à la présence de la glace, ce qui la rend plus complexe. La première étape est la formation des cristaux de glace primaire.

Les petits cristaux de glace primaire, appelés pristines, sont initiés par deux processus de nucléation hétérogène :

- Par dépôt : formation directe d'embryons de glace en environnement sursaturé par rapport à la glace, ou en 2 étapes, par dépôt de vapeur sur des noyaux qui sont simultanément CCN et IN, suivie de congélation.
- Par contact : congélation des gouttes d'eau surfondues suite à l'attraction de particules d'aérosols par diffusiphorèse, ou par mouvement brownien.

A des températures de l'ordre de  $-35^{\circ}\text{C}$  et inférieures, la nucléation homogène se produit et les gouttelettes de nuage congèlent spontanément très rapidement.

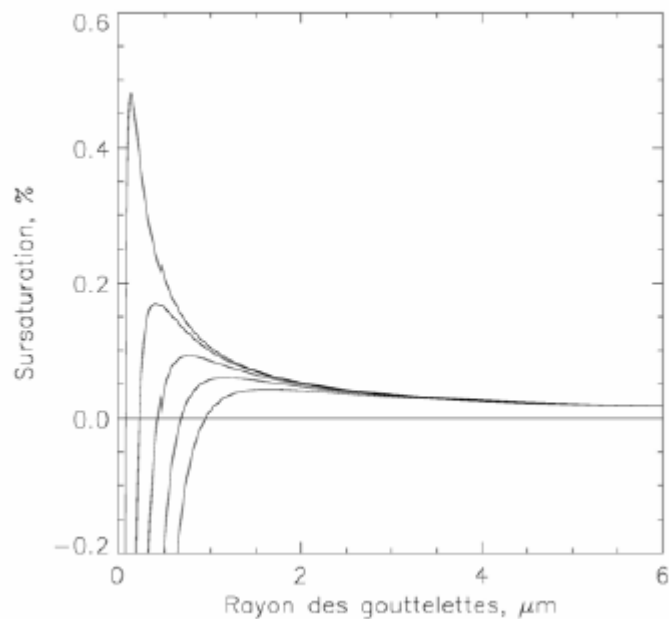
Les cristaux de glace formés peuvent ensuite soit croître par dépôt de vapeur, soit disparaître par sublimation selon le niveau de saturation de l'environnement par rapport à la glace. Les flocons



de neige peuvent se former par autoconversion des pristines et dépôt de vapeur/givrage des pristines alors que la neige roulée a comme source principale la congélation par contact des gouttes de pluie et le givrage intense des gouttelettes nuageuses sur les flocons de neige. Quand la température de l'air devient positive, les petits cristaux primaires sont immédiatement convertis en eau nuageuse, et les flocons de neige et la neige roulée fondent, entraînant la formation de gouttes (Rutledge et Hobbs, 1983, 1984).

### 1.2.1. Nucléation des gouttelettes et de la glace élémentaire

La genèse des nuages nécessite la présence d'aérosols ayant des particularités précises : les noyaux de condensation (CCN pour Cloud Condensation Nuclei) et les noyaux de congélation (IN pour Ice Nuclei). En effet, sans la présence de ces aérosols, aucun nuage ne pourrait se former dans la gamme de sursaturations rencontrées dans la troposphère, la nucléation homogène des gouttelettes nécessitant des sursaturations très élevées. La formation spontanée d'agrégat de molécules d'eau dans une parcelle d'air riche en vapeur d'eau sans CCN ou IN nécessite une sursaturation énorme, du fait que la pression de vapeur saturante au dessus d'une gouttelette est d'autant plus élevée que le diamètre de la gouttelette est faible (effet Kelvin), la nucléation homogène devant se produire initialement sur les gouttelettes dont la taille est de l'ordre de celle de quelques molécules d'eau. Les CCN sont des particules aérosols appartenant principalement aux particules d'accumulation ou aux grosses particules qui ont la particularité d'être hydrophiles, caractéristique due à leur nature chimique (présence d'une fraction soluble) et permettent de former des gouttelettes dont la taille initiale est bien plus importante que par la nucléation homogène. L'hygroscopicité, fonction de la solubilité de l'aérosol, porte le nom d'effet Raoult. Si cette taille est suffisante pour que la sursaturation de la vapeur d'eau dans l'air soit supérieure à la sursaturation nécessaire à la croissance de l'aérosol humidifié, la gouttelette se forme par dépôt de vapeur et le nuage de gouttelettes apparaît. C'est la théorie de Köhler, qui prend en compte la solubilité de l'aérosol et la taille de la gouttelette en formation. La figure (7) présente une famille de courbes de Köhler, avec la sursaturation à l'équilibre en fonction de la taille de la gouttelette et en fonction de la taille de l'aérosol initial, ici du sulfate d'ammonium. La croissance de la gouttelette se fait par dépôt de vapeur, elle s'accompagne donc d'une baisse de la sursaturation, c'est la raison pour laquelle, les points à gauche du maximum sont dans un équilibre stable, alors qu'à droite du maximum, l'équilibre est instable et aboutit à la croissance des gouttelettes. Le point maximum porte le nom de point critique, déterminé par une sursaturation et un rayon critique pour un aérosol de taille et de propriétés physico-chimiques données. Abdul-Razzak et al. (1998, 2000) ont développé une paramétrisation de la théorie de Köhler permettant de calculer le nombre d'aérosols activé à partir d'une distribution lognormale multimodale des aérosols. Cette paramétrisation nécessite de calculer, pour chaque mode d'aérosol, selon sa nature chimique, le rayon du plus petit aérosol sec activé, ce rayon correspond au maximum de la courbe de Köhler, figure (7), nécessitant une sursaturation d'autant plus élevée que l'aérosol est petit et pauvre en espèces chimiques hydrophiles.



**Figure 7 : Courbes de Köhler : Variation de la sursaturation en fonction du rayon pour des gouttelettes de solution formées à partir d'un noyau de sulfate d'ammonium ( $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ ) de rayon sec valant 25 nm, nécessitant la sursaturation la plus élevée, 50 nm, 75 nm, 100 nm et 125 nm, nécessitant une sursaturation moindre . (Guibert. 2002).**

A partir d'un certain seuil d'humidité relative, l'aérosol devient humide, sa fraction soluble est dissoute et on parle de point de déliquescence. Ce point de déliquescence nécessite une humidité relative particulière (fonction de la composition de l'aérosol et de sa fraction soluble) inférieure à 100%. Par exemple, pour un cristal de NaCl pur à 25°C le point de déliquescence est à 75,7% d'humidité relative.

Certains aérosols ont la particularité d'être des noyaux glaçogènes (IN) aboutissant à la formation de cristaux de glace, on parle de nucléation hétérogène des cristaux de glace. Comme on l'a vu précédemment, elle se fait par trois mécanismes distincts, le premier est le dépôt de vapeur d'eau directement sous forme de glace sur le noyau glaçogène, le second mécanisme fait appel à des noyaux qui ont la propriété d'être à la fois des noyaux de condensation et de congélation. La vapeur d'eau se dépose sous forme liquide sur le noyau, puis congèle grâce aux propriétés IN du noyau. Enfin, le troisième mécanisme est dû à la collection de noyaux de congélation par des gouttelettes d'eau surfondue, aboutissant à la formation de cristaux de glace (Pruppacher et Klett., 1978, p242), on parle alors de nucléation par contact. La propriété glaçogène d'un aérosol est due à la nature de sa surface, favorisant l'arrangement des molécules d'eau selon un schéma proche du réseau cristallin de la glace, il ne s'agit donc pas préférentiellement d'aérosols solubles, comme pour les CCN, mais d'aérosols plutôt non solubles tels que les cristaux d'iodure d'argent, de silice, certaines protéines, mais aussi certaines bactéries évoluant dans l'atmosphère. Comme on l'a vu précédemment, les cristaux de glace primaire peuvent aussi se former par nucléation homogène des gouttelettes surfondues ou glaciation homogène, ce processus n'étant efficace qu'à des températures très basses (inférieures à -40°C), il est souvent négligeable pour les gammes de températures des nuages mixtes troposphériques.

Les paramétrisations de Fletcher. (1962), et Cooper. (1986) permettent de prendre en compte la nucléation hétérogène par dépôt de vapeur et par contact, avec une formule telle que le nombre de noyaux glaçogènes soit inversement proportionnel à la température. En effet, les mesures sur le terrain montrent que ces trois modes de formation de la glace nuageuse initiée à partir de particules

aérosols sont fortement dépendants de la température, malgré le fait que le nombre d'aérosols soit beaucoup plus élevé en basse couche à des températures relativement élevées, qu'en altitude à basses températures (Pruppacher et Klett, 1978, p244, 246). Les formules de Cooper. (1986) et Fletcher. (1962) sont de la forme :

$$NucléationIce = A \exp(B(T_0 - T)) \quad (1)$$

en nb/m<sup>3</sup>

Où  $T_0 = 273.15$  K

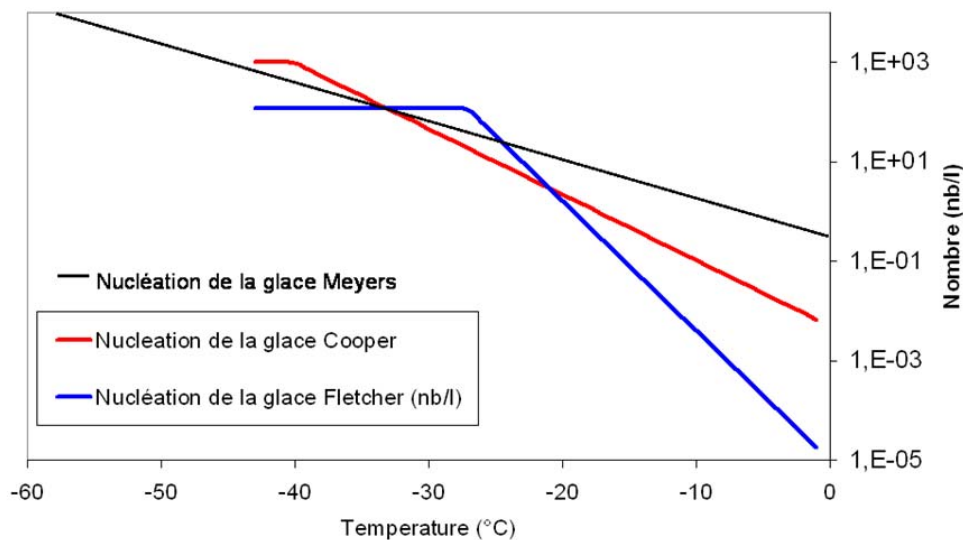
$A = 0.005$   $B = 0.304$  pour Cooper. (1986) pour  $T > 233$  K

$A = 10^{-5}$   $B = 0.6$  pour Fletcher. (1962) pour  $T > 246$  K

Il existe enfin une paramétrisation développée plus récemment pour la nucléation hétérogène de la glace nuageuse, et présentée par Meyers et al. (1992), telle que :

$$NucléationIce = \exp(-0,639 + 0,1296 S_i)$$

Où  $S_i$  est la sursaturation au dessus de la glace (en pourcentage)



**Figure 8 : Nombre de cristaux formés par nucléation hétérogène de la glace nuageuse selon Fletcher. (1962), Cooper. (1986) et Meyers et al. (1992), en fonction de la température.**

On observe sur la figure (8) que le nombre de cristaux de glace élémentaire généré par les trois types de paramétrisations est du même ordre de grandeur entre -20°C et -40°C, alors qu'aux températures les moins froides, surtout proche de zéro, plusieurs ordres de grandeurs séparent les paramétrisations de Fletcher. (1962), Cooper. (1986) et Meyers et al. (1992). Cependant, seule la paramétrisation développée par Cooper. (1986) repose sur des mesures *in situ* de concentrations en cristaux de glace. De plus, Thompson et al. (2004) ont effectué des tests de sensibilité sur ces trois types de paramétrisations de la nucléation hétérogène à l'aide d'un modèle de nuage résolu et ont conclu que pour les nuages dont la température de sommet de nuage est inférieure à -25°C, les différences entre les trois paramétrisations sont faibles, mais que pour les nuages dont la température de sommet est de -10°C, les différences deviennent très significatives, avec un contenu en glace bien plus élevé et une plus forte perte du rapport de mélange en eau nuageuse (au profit de la glace) avec la paramétrisation de Meyers et al. (1992) que souhaité. Thompson et al. (2004) ont finalement choisi d'utiliser la paramétrisation de Cooper. (1986) plutôt que celle de Fletcher. (1962) en arguant du fait que cette paramétrisation repose sur des mesures directes de la concentration des cristaux de glace formés. C'est également le choix que nous avons fait comme nous le verrons par la suite (cf 1.4.3.1, chapitre 2).

### 1.2.2. Congélation hétérogène des gouttes et gouttelettes

Un mécanisme aboutit à la formation d'hydrométéores glacés à partir de l'eau nuageuse et de la pluie sans collision : la congélation hétérogène de gouttelettes et gouttes nuageuses surfondues aux températures négatives mais supérieures à -35°C. Le point de vue de Bigg. (1953) sur la question est que pour une gouttelette d'une taille donnée à une température donnée il y a une certaine probabilité que les molécules d'eau au sein de cette gouttelette se positionnent de telle sorte qu'elles forment, de manière aléatoire, un germe de glace aboutissant à la congélation de la gouttelette d'eau surfondue. Cette probabilité est d'autant plus élevée que le volume des gouttelettes est élevé, et que la température est basse. La paramétrisation de la congélation hétérogène des gouttelettes nuageuses donnant de la glace nuageuse proposée par Bigg. (1953) s'exprime de la façon suivante :

$$\left(\frac{\partial Q_i}{\partial t}\right)_{freez} = B * EXP[A(T_0 - T) - 1] \frac{\rho_a Q_c^2}{\rho_w N_c} = -\left(\frac{\partial Q_c}{\partial t}\right)_{freez} \quad (2)$$

Avec  $A=0,66 \text{ K}^{-1}$  et  $B=100 \text{ m}^{-3}\text{s}^{-1}$ ,  $Q_i$  est le rapport de mélange de la glace nuageuse (kg/kg),  $Q_c$ , celui de l'eau nuageuse (kg/kg),  $\rho_a$  est la masse volumique de l'air ( $\text{kg/m}^3$ ),  $\rho_w$ , celle de l'eau en ( $\text{kg/m}^3$ ),  $N_c$  est la concentration en gouttelettes nuageuses ( $\text{nb/m}^3$ ),  $T$  est la température (K) et  $T_0=273.15 \text{ K}$ .

La pluie est aussi amenée à changer de phase par congélation hétérogène en formant de la neige roulée selon le mécanisme présenté par Bigg. (1953) et détaillé par Wisner et al. (1972), avec les mêmes coefficients A et B. L'évolution en rapport de mélange s'écrit :

$$\left(\frac{\partial Q_r}{\partial t}\right)_{freezqr} = -\int_0^{\infty} B[EXP(A(T_0 - T)) - 1] V(D_r) m(D_r) N(D_r) d(D_r) = -\left(\frac{\partial Q_g}{\partial t}\right)_{freezqr} \quad (3)$$

Avec  $V(D_r)$  le volume des gouttes ( $\text{m}^3$ ),  $m(D_r)$  leur masse(kg) et  $N(D_r)$  leur nombre ( $\text{nb/m}^3$ ),  $Q_r$  est le rapport de mélange de la pluie (kg/kg) et  $Q_g$ , celui de la neige roulée (kg/kg).

### 1.2.3. Croissance par dépôt de vapeur, évaporation

La croissance par dépôt de vapeur (terme positif) ou l'évaporation (terme négatif) de toutes les catégories d'hydrométéores est dictée par la thermodynamique. Pruppacher et Klett (1978) proposent, pour chaque type d'hydrométéore, la formulation suivante :

$$\left(\frac{\partial Q_j}{\partial t}\right)_{depot\_vap} = \frac{(S_p - 1)}{A_p \rho_a} N_j \int_0^{\infty} C_j \overline{f_j} G_j(D) dD \quad (4)$$

Avec :

- j est le type d'hydrométéore,
- p la phase (liquide ou glacée),
- $Q_j$  est le rapport de mélange de l'hydrométéore (kg/kg) et  $N_j$  est sa concentration en nombre ( $\text{nb/m}^3$ ).
- $G_j(D)$  est la distribution normalisée, ou loi de probabilité (dont l'intégrale de 0 à l'infini vaut 1), définie sur D, l'ensemble des diamètres.
- C la capacitance de l'hydrométéore, proportionnelle au diamètre de l'hydrométéore tel que  $C=C_1 D$  (Rutledge et Hobbs, 1983 ; 1984), ou  $C_1$  est le coefficient de capacitance, dépendant du type d'hydrométéore (Lafore et al., 1998, schéma microphysique [http://mesonh.aero.obs-mip.fr/mesonh/dir\\_doc/book1\\_14dec2001/node19.html#eq3](http://mesonh.aero.obs-mip.fr/mesonh/dir_doc/book1_14dec2001/node19.html#eq3)),

- $S_p$  est la sursaturation (ou sous saturation) au dessus de la phase 'p' de l'hydrométéore en question,
- $\rho_a$  densité de l'air ( $\text{kg/m}^3$ )

-  $A_p$  :  $A_p = \frac{L_p^2}{K_a R_v T^2} + \frac{R_v T}{\chi e_p}$  Représente une fonction thermodynamique de la croissance des hydrométéores, fonction de  $L_p$  (J/kg) la chaleur latente d'évaporation ou de sublimation (suivant la phase de l'hydrométéore), de la température (K), de  $K_a$  la conductivité thermique de l'air (J/(m s K)), de  $R_v$  la constante massique de la vapeur d'eau (J/(kg K)), de  $e_p$  la pression partielle de vapeur saturante au dessus de la phase considérée liquide ou glacée (Pa), et de  $\chi$  la diffusivité de la vapeur d'eau dans l'air ( $\text{m}^2/\text{s}$ ) tel que :

-  $\chi$  :  $\chi = \text{Scv}^{\frac{1}{3}} \text{Re}^{\frac{1}{2}}$

Scv représente le nombre de Schmidt de la vapeur d'eau (viscosité cinématique/diffusivité massique, sans dimension), Une très bonne approximation du nombre de Schmidt est  $\text{Scv}=0,635$  (Lafore et al., 1998, schéma microphysique [http://mesonh.aero.obs-mip.fr/mesonh/dir\\_doc/book1\\_14dec2001/node19.html#eq3](http://mesonh.aero.obs-mip.fr/mesonh/dir_doc/book1_14dec2001/node19.html#eq3)), Re est le nombre de Reynolds (sans dimension) représentant la nature de l'écoulement, laminaire ou turbulent, tel que :

-  $\text{Re} = \frac{V(D_x)D_x\rho_a}{\eta}$

$\eta = 1,718.10^{-5} + 0,0049.10^{-5}(T - T_0)$

Où  $\eta$  représente la viscosité dynamique de l'air (Pa s), et V la vitesse de chute de l'hydrométéore (m/s).

-  $f_j$  :  $\overline{f_j} = \overline{f_{0j}} + \overline{f_{1j}\chi} + \overline{f_{2j}\chi^2}$

Représente le facteur de ventilation, prenant en compte la trajectoire irrégulière d'un hydrométéore dans sa chute. Les facteurs de ventilation sont donnés par Hall et Pruppacher (1977) pour la glace, Beard et Pruppacher (1971) pour le neige roulée, Thorpe et Mason (1966) pour la neige et sont valables aussi bien pour des sphères que pour des sphéroïdes. On observe que le facteur de ventilation est fonction de la vitesse (par le nombre de Reynolds apparaissant dans la formule de  $\chi$  la diffusivité de la vapeur d'eau dans l'air), donc du diamètre de l'hydrométéore, d'où la difficulté du terme à intégrer.

#### 1.2.4. Croissance par collision/coalescence des hydrométéores dans un nuage mixte

La représentation de la croissance des cristaux par collection est difficile et encore très controversée. Elle fait l'hypothèse de croissance continue et d'un concept de balayage géométrique simple par le noyau de collection K. Ainsi, l'interaction entre une espèce j de diamètre  $D_j$  (m) et une espèce k de diamètre  $D_k$  (m) conduit à la définition de K comme :

$$K(D_j, D_k) = \frac{\pi}{4} (D_j + D_k)^2 |V_j(D_j) - V_k(D_k)| E_{jk} \quad (5)$$

Où  $E_{jk}$  est l'efficacité de collection, grandeur souvent mal connue comme nous le verrons plus tard et  $V_j$  et  $V_k$  sont les vitesses de chutes de l'espèce j et de l'espèce k respectivement.

Dans certains cas, le processus de collection COLL impliquant j et k va aboutir à la formation d'une troisième catégorie l de sorte que le taux de variation du rapport de mélange de l'espèce k (perte pour k) dû à la collection en masse de l'espèce j va s'écrire :

$$-\left(\frac{\partial Q_k}{\partial t}\right)_{coll} = COLLKJL = \frac{1}{\rho} \int_0^\infty \left\{ \int_0^\infty K(D_j, D_k) m_k(D_k) n_k(D_k) dD_k \right\} n_j(D_j) dD_j \quad (6)$$

De même, le taux de variation du rapport de mélange de j (puits aussi pour j) est :

$$-\left(\frac{\partial Q_j}{\partial t}\right)_{coll} = COLLJKL = \frac{1}{\rho} \int_0^\infty \left\{ \int_0^\infty K(D_j, D_k) m_j(D_j) n_j(D_j) dD_j \right\} n_k(D_k) dD_k \quad (7)$$

et la variation du rapport de mélange pour l (terme source pour l) devient :

$$\left(\frac{\partial Q_l}{\partial t}\right)_{coll} = COLLJKL + COLLKJL \quad (8)$$

Si l s'identifie à une des autres espèces initiales, j par exemple, on ne calcule qu'un seul taux de collection tel que :

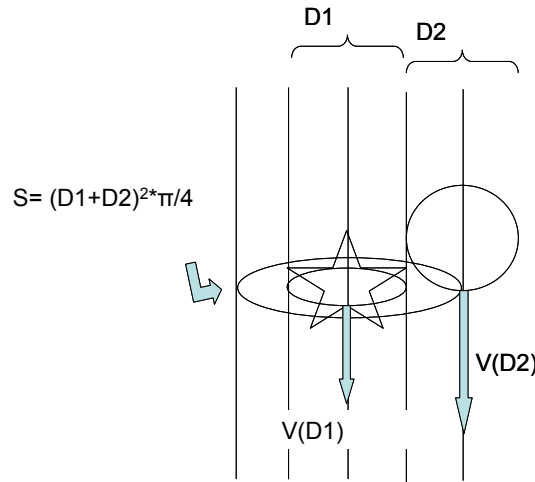
$$\left(\frac{\partial Q_j}{\partial t}\right)_{coll} = -\left(\frac{\partial Q_k}{\partial t}\right)_{coll} = COLLKJJ = \frac{1}{\rho} \int_0^\infty \left\{ \int_0^\infty K(D_j, D_k) m_k(D_k) n_k(D_k) dD_k \right\} n_j(D_j) dD_j \quad (9)$$

Où COLLKJJ est le taux de variation du rapport de mélange de j lié à la collection de la seule espèce k.

En utilisant les mêmes conventions, l'équation de collection continue de l'évolution en nombre s'écrit pour l'espèce k par exemple :

$$-\left(\frac{\partial N_k}{\partial t}\right)_{coll} = COLLNKJL = -\int_0^\infty \left\{ \int_0^\infty K(D_j, D_k) n_k(D_k) G_j dD_k \right\} n_j(D_j) dD_j \quad (10)$$

La figure (9) permet de visualiser de manière simplifiée les grandeurs utilisées dans les équations précédentes et leur signification physique.



**Figure 9 : Représentation graphique des termes de l'équation de collection continue**

Le premier terme du noyau de collection K représente la surface de collision entre les hydrométéores avec un cercle dont le diamètre correspond à la somme des diamètres des deux hydrométéores entrant en jeu. C'est-à-dire la surface sur laquelle le centre de gravité de l'hydrométéore 2 (ici une gouttelette) doit passer pour entrer en collision avec l'hydrométéore 1 (ici un cristal de glace). Le deuxième terme de K correspond à la différence de vitesse de chute entre les hydrométéores, qui permet la collision entre eux, puis on multiplie l'ensemble par le nombre d'hydrométéore k, par le nombre et la masse de l'hydrométéore j pour lequel on souhaite

suivre l'évolution en rapport de mélange (par le nombre uniquement si on souhaite suivre l'évolution du nombre), par l'efficacité de collection  $E_{jk}$  et par les distributions des deux types d'hydrométéores en présence, enfin on intègre le tout sur le domaine des diamètres.

$E_{jk}$  représente l'efficacité de collection et s'obtient en multipliant l'efficacité de collision par l'efficacité de coalescence :

$$E_{jk} = E_{coll,jk} E_{coal,jk} \leq 1$$

L'efficacité de collision permet de prendre en compte le fait que tous les hydrométéores contenus dans le cylindre de chute d'un autre hydrométéore ne rentreront pas en collision avec ce dernier. En effet, plus les hydrométéores sont petits, plus ils suivent les lignes de courant. Klett et David, (1973) ont montré que entre des petites gouttes, d'un rayon de  $7,5\mu\text{m}$  et de  $8\mu\text{m}$ , l'efficacité de collision est négligeable ( $<1\%$ ), alors que entre des gouttes de rayons  $25\mu\text{m}$  et  $7,5\mu\text{m}$  l'efficacité de collision est supérieure à  $10\%$

De plus, le processus de collision ne s'accompagne pas toujours de la coalescence, les hydrométéores peuvent rebondir, se briser ou encore se séparer après un très court instant. Ce phénomène est décrit par l'efficacité de coalescence  $E_{coal}$ .

Les régimes de croissance par dépôt de vapeur entrent en compétition avec les processus de collection pour déterminer la nature de l'hydrométéore obtenu, ainsi un givrage intense et prépondérant favorisera la formation de neige roulée au détriment des autres hydrométéores, alors qu'un dépôt de vapeur prépondérant favorisera la formation de neige, cet aspect sera développé au Chapitre II section 1.4.6.2.

### 1.2.5. Fonte des hydrométéores glacés.

- Fonte des hydrométéores dans un air à température positive

Dès que la température devient positive, les hydrométéores glacés commencent à fondre, la taille de la neige et la neige roulée, est suffisamment importante pour que le caractère progressif de cette fonte soit significatif.

Les hydrométéores glacés soumis à des températures positives commencent à fondre. Mason et al., (1971) proposent une paramétrisation de la fonte d'un hydrométéore glacé prenant en compte la différence de température entre l'air ambiant et l'hydrométéore en cours de fonte (par définition à  $0^\circ\text{C}$ ), la chaleur latente de fusion, la conductivité thermique de l'air ainsi que le facteur de ventilation qui contrôlent la vitesse des échanges thermiques entre l'hydrométéore et l'air :

$$\left( \frac{\partial m_j}{\partial t} \right)_{\text{fonte}} = \frac{-2\pi}{\rho_a L_f} K_a D_j (T - T_0) \bar{f}_j \quad (11)$$

$m_j$  est la masse de l'hydrométéore (kg),  $\bar{f}_j$  est le facteur de ventilation défini précédemment,  $L_f$  représente la chaleur latente de fusion (J/kg),  $K_a$  la conductivité thermique de l'air, ' $j$ ' représente l'hydrométéore en cours de fonte.

- Fonte des hydrométéores par collision/coalescence avec des hydrométéores liquides

Un deuxième mécanisme aboutit à la fonte des hydrométéores glacés, lorsque ces derniers entrent en collision avec des hydrométéores liquides à température positive. La capacité calorifique de l'eau liquide au dessus de  $0^\circ\text{C}$  sert à faire fondre la glace en présence. La fonte de l'hydrométéore glacé est fonction de la quantité d'eau liquide de collection, de sa température et de la capacité calorifique de l'eau, ainsi que de la chaleur latente de fusion de la glace (équation 11), l'énergie apportée par l'eau liquide servant à faire fondre la glace à  $0^\circ\text{C}$ .

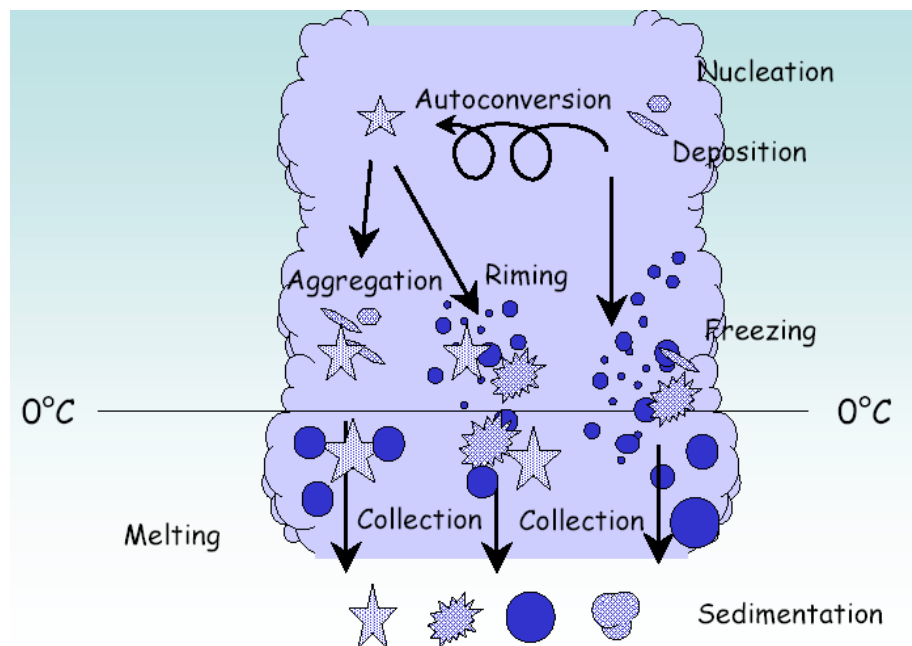
$$-\left( \frac{\partial Q_j}{\partial t} \right)_{\text{fonte\_collection}} = C_{pw}(T - T_0) \left( \frac{\partial Q_j}{\partial t} \right)_{\text{collection}} / L_f = + \left( \frac{\partial Q_r}{\partial t} \right)_{\text{fonte\_collection}} \quad (12)$$

Où  $C_{pw}$  est la capacité calorifique de l'eau (J/K/kg).

Lin et al. (1983) considèrent que la collection de l'eau nuageuse et de la pluie par l'hydrométéore glacé précipitant sert à fabriquer de la pluie. C'est donc un terme source pour la pluie et puits pour l'hydrométéore glacé précipitant.

### 1.2.6. Résumé des processus microphysiques en phase mixte

En résumé, les différents processus intervenant dans la phase glace sont schématisés sur la figure (10).



**Figure 10: Résumé des interactions entre les différents types d'hydrométéores dans un nuage mixte.**



## 2. La chimie nuageuse

### 2.1. La chimie multiphase des nuages chauds

Les connaissances essentielles à la compréhension de la chimie nuageuse sont celles mettant en jeux les équilibres thermodynamiques, tel l'équilibre de Henry, régissant les concentrations relatives d'une espèce donnée entre la phase gazeuse et la phase aqueuse, l'équilibre d'hydratation, l'équilibre acide base, mais aussi la théorie de la cinétique du transfert de masse, ainsi que la réactivité des espèces chimiques dans les phases gazeuses et aqueuses du nuage. La réactivité chimique en phase gazeuse est actuellement bien documentée (Atkinson et al., 2004 ;2006) et ne sera donc pas discuté ici.

#### 2.1.1. Equilibre de Henry

La loi de Henry décrit l'équilibre thermodynamique d'un gaz parfait présent simultanément dans la phase gazeuse et dissout dans la phase aqueuse, dans le cas d'une solution idéale (dilution infinie). Cette loi représente donc la solubilité du gaz :

$$H_A = \frac{[A]}{P_A} \quad (13)$$

Où :

$H_A$  est la constante de Henry (M/atm),

$[A]$  est la concentration de l'espèce A en phase aqueuse (M)

$P_A$  est la pression partielle en phase gazeuse de l'espèce A (atm).

La constante de Henry ne dépend que de la température suivant l'intégrale de la formule de Van't Hoff :

$$H_A = H_A^\theta \cdot \exp \left[ \frac{-\Delta H}{R} \left( \frac{1}{T} - \frac{1}{T^\theta} \right) \right] \quad (14)$$

Où:

$T^\theta = 298,15\text{K}$  (soit  $25^\circ\text{C}$ )

$H_A^\theta$  est la constante de Henry à  $T=298,15\text{ K}$

$\Delta H$  est l'enthalpie de dissolution

$R$  est la constante des gaz parfait :  $8,3145\text{ J /K/mol}$

On remarquera que les enthalpies de dissolution sont toujours négatives donc la solubilité des gaz augmente quand la température diminue.

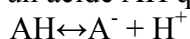
Dans la pratique, dans la phase aqueuse le gaz A peut se dissocier ou s'hydrater, ce qui a pour effet de diminuer sa concentration sous la forme A. On définit donc la constante de Henry effective qui relie la concentration totale du gaz dissout  $[A]_{(l,t)}$  à sa pression partielle (la concentration totale est la concentration accessible par la mesure). Dans ce cas, la solubilité du gaz est augmentée par ces rapides équilibres chimiques. La constante de Henry effective est définie par :

$$H_A^* = \frac{[A]_{(l,t)}}{P_A} \quad (15)$$

Où :

$[A]_{(l,t)}$  est la concentration totale du gaz dissout.

Pour un acide AH qui se dissocie suivant l'équilibre acido-basique :



La constante d'équilibre est définie par :

$$K_{AH} = \frac{[A^-][H^+]}{[AH]_{(l)}} \quad (16)$$

La concentration totale de AH dans la solution s'écrit, d'après les relations précédentes :

$$[AH]_{(l,t)} = [AH]_{(l)} + [A^-] = [AH]_{(l)} \left( 1 + \frac{K_{AH}}{[H^+]} \right) = H_{AH} P_{AH} \left( 1 + \frac{K_{AH}}{[H^+]} \right) \quad (17)$$

On obtient alors la constante de Henry effective pour cet acide :

$$H_{AH}^* = H_{AH} \left( 1 + \frac{K_{AH}}{[H^+]} \right) \quad (18)$$

De même, pour une base BOH, la constante de Henry effective est donnée par :

$$H_{BOH}^* = H_{BOH} \left( 1 + \frac{K_{BOH}}{[OH^-]} \right) \quad (19)$$

Pour les acides et les bases, la constante de Henry effective dépend du pH de la solution.

Pour une espèce chimique A qui s'hydrate en solution, la constante de Henry effective est liée à la constante d'hydratation  $K_A$  par la relation :

$$H_A^* = H_A (1 + K_A) \quad (20)$$

Les valeurs des constantes des Henry des gaz troposphériques varient sur plusieurs ordres grandeurs, les acides forts comme l'acide nitrique ou l'acide chlorhydrique étant les plus solubles. La figure (11) (Sanders, 1999) donne une vue d'ensemble des valeurs des constantes de Henry pour quelques espèces d'intérêt troposphérique. Pour les acides, ce sont les valeurs des constantes de Henry effectives qui sont données, elles sont donc dépendantes du pH de la solution qui est lui aussi indiqué. Dans un nuage, on considère que les gouttes de pluie et les gouttelettes nuageuses sont proches de solutions idéales, mais ce n'est pas le cas pour les aérosols humides, les gouttelettes en formation ou qui sont en fin d'évaporation.

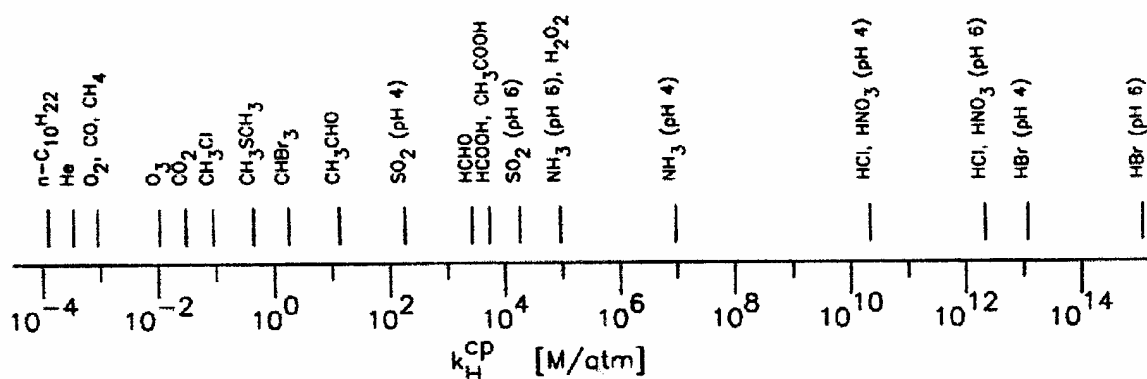


Figure 11: Valeurs de constantes de Henry pour quelques espèces d'intérêt troposphérique, d'après Sanders. (1999).

### 2.1.2. Transfert de masse entre les phases gazeuse et aqueuse

Dans la réalité, les mesures montrent que l'équilibre de Henry est rarement atteint, il faut donc prendre en compte la cinétique du transfert des espèces chimiques entre la phase aqueuse et gazeuse. Schwartz (1986) a développé une théorie sur cette cinétique.

Schwartz (1986) décompose le processus du transfert air/gouttelette en plusieurs étapes successives. Ces étapes sont illustrées sur la figure (12) ci-dessous pour une espèce A en présence d'une gouttelette de rayon  $a$ .

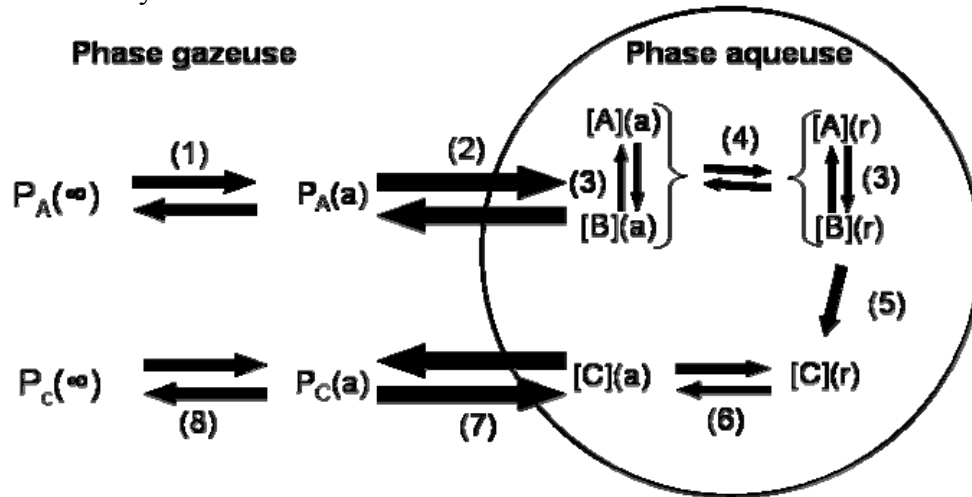


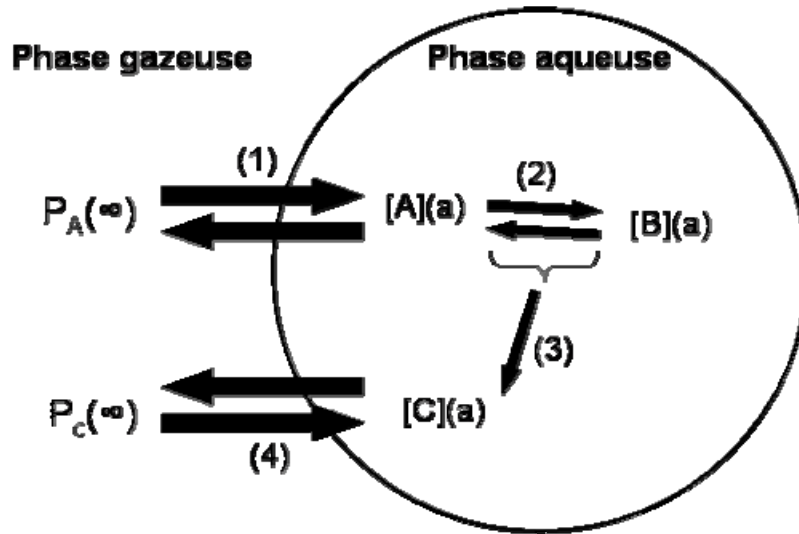
Figure 12 : Processus physico-chimiques du transfert air/gouttelettes pour une gouttelette de rayon  $a$ .

Les étapes, numérotées de 1 à 8 sont les suivantes :

- (1): Transport de l'espèce chimique A depuis la phase gazeuse vers l'interface air eau, gouverné par l'équation différentielle de la diffusion en phase gazeuse.  $P_A(\infty)$  représente la pression partielle de l'espèce A dans l'air et  $P_A(a)$ , la pression partielle de l'espèce A à la surface de la gouttelette.
- (2) : Transport de l'espèce A à travers l'interface, et établissement possible d'un équilibre local.  $[A](a)$  est la concentration de l'espèce A en phase aqueuse à l'interface.
- (3) : Etablissement possible d'un équilibre rapide en phase aqueuse impliquant le gaz dissout ; équilibre d'hydratation ou de dissociation.  $[B](a)$  est la concentration de l'espèce B en équilibre avec A dissoute en  $r=a$ , et  $B(r)$  à l'intérieur de la gouttelette.
- (4) : Diffusion en phase aqueuse de l'espèce dissoute A et/ou B en équilibre avec A à l'intérieur de la gouttelette, gouvernée par l'équation différentielle de la diffusion en phase aqueuse.
- (5) : Réactions chimiques en phase aqueuse.  $[C](r)$  est la concentration d'un des produits issus d'une réaction de l'espèce A dissoute ou de sa forme en équilibre B. Cette concentration dépend du rayon  $r$ .
- (6) : Transport des produits de réaction en phase aqueuse suivant l'équation différentielle de la diffusion en phase aqueuse.
- (7) : Passage possible des produits volatils en phase gazeuse.
- (8) : Transport des produits en phase gazeuse suivant l'équation différentielle de la diffusion en phase gazeuse.

L'étude des étapes limitantes permet de simplifier les processus présentés sur la figure(12) en ceux illustrés sur la figure (13) ci-dessous pour une espèce A en présence d'une gouttelette de rayon  $a$ . Les étapes à prendre en compte étant le transport de l'espèce depuis la phase gazeuse vers

l'interface par diffusion en phase gazeuse et le transfert de l'espèce de l'air vers l'intérieur de la gouttelette (la diffusion en phase aqueuse n'est pas limitante).



**Figure 13: Processus physico-chimiques limitants du transfert air/gouttelettes pour une gouttelette de rayon a.**

- (1): Transfert de l'espèce chimique A depuis la phase gazeuse vers la phase aqueuse prenant en compte la diffusion en phase gazeuse et le transfert de masse à l'interface air/gouttelette.  $P_A(\infty)$  est la pression partielle de l'espèce A dans l'air
- (2): Etablissement rapide d'un équilibre en phase aqueuse impliquant le gaz dissout : équilibre de dissociation ou d'hydratation
- (3) : Réactions chimiques en phase aqueuse impliquant l'espèce chimique A dissoute ou sa forme en équilibre B. C est un des produits de ces réactions, sa concentration étant considérée comme homogène sur le volume de la gouttelette
- (4) : Passage possible des produits volatils en phase gazeuse par le processus inverse du transfert air gouttelette.

A partir des processus décrit sur la figure (13), les évolutions temporelles des concentrations des espèces chimiques dans la phase gazeuse et aqueuse peuvent être mises en équations suivant le système d'équations différentielles suivant :

$$\frac{dC_g}{dt} = \overbrace{P_g - D_g C_g}^{(0)} - \overbrace{Lk_t C_g}^{(1)} + \overbrace{\frac{k_t}{RTH_{eff}} C_{aq}}^{(4)} \quad (21)$$

$$\frac{dC_{aq}}{dt} = \overbrace{P_{aq} - D_{aq} C_{aq}}^{(2)+(3)} + \overbrace{Lk_t C_g}^{(1)} - \overbrace{\frac{k_t}{RTH_{eff}} C_{aq}}^{(4)} \quad (22)$$

Où :

$C_g$  et  $C_{aq}$  sont respectivement les concentrations de l'espèce en phase gazeuse et aqueuse (moléc/cm<sup>3</sup> d'air).

$P_g$  ( $P_{aq}$ ) et  $D_g$  ( $D_{aq}$ ) sont respectivement les termes de production (moléc/cm<sup>3</sup>/s) et de destruction (s<sup>-1</sup>) en phase gazeuse et aqueuse.

$L$  est le contenu en eau liquide (vol/vol).

T est la température (K)

R est la constante de gaz parfait (=0,08206 atm/M/K)

$H_{\text{eff}}$  est la constante de Henry effective de l'espèce en (M/atm).  $H_{\text{eff}}$  varie en fonction de la température et considère les possibles équilibres de dissociation ou d'hydratation de l'espèce.

$k_t$  est le coefficient de transfert de masse ( $\text{s}^{-1}$ ) tel que :

$$k_t = \left( \frac{a^2}{3D_g} + \frac{4a}{3\alpha v} \right) \quad (23)$$

Ce coefficient est fonction du temps caractéristique de la diffusion en phase gaz (qui dépend du coefficient de diffusion en phase gaz  $D_g$  et du rayon de la gouttelette au carré) et du transport à l'interface air/gouttelette, qui dépend de la vitesse quadratique moyenne, du coefficient d'accommodation  $\alpha$  et du rayon de la gouttelette.

Cette formulation permet de définir un facteur de répartition des espèces chimiques entre les phases aqueuses et gazeuses. Ce paramètre est défini par Audiffren et al. (1998) et par Chaumerliac et al. (2000). Il est égal au quotient du terme (4) et (1), qui nous donne :

$$q = \frac{C_{aq}}{LH_{\text{eff}}RTC_g} \quad (24)$$

Ce facteur de répartition des espèces entre les phases aqueuses et gazeuses est égal à 1 si l'espèce est à l'équilibre de Henry. Si sa valeur est inférieure à 1, cela signifie que la concentration de cette espèce dans la phase aqueuse n'atteint pas la concentration à l'équilibre prévue par la loi de Henry, et inversement. Globalement, pour les espèces très peu solubles telles que les  $\text{NO}_x$  ou l'ozone, le facteur  $q$  est proche de 1, alors que pour les espèces très solubles telles que  $\text{H}_2\text{O}_2$ , ou le radical  $\text{HO}_2$ , le facteur  $q$  n'est pas nécessairement égal à 1. De fait, pour les espèces solubles, c'est la réactivité de l'espèce dans les deux phases et la valeur de la constante de Henry effective qui vont déterminer le facteur de répartition entre les phases.

### 2.1.3. Réactivité chimique en phase aqueuse

Herrmann (2003) font une description générale de la réactivité de l'atmosphère en se plaçant du point de vue du chimiste. La variabilité dans les conditions rencontrées dans la troposphère fait qu'une large variété de réactions contribue à la conversion des constituants de l'atmosphère (Herrmann, 2003). La phase aqueuse atmosphérique est susceptible de capturer les espèces chimiques solubles, ainsi que de dissoudre celles contenues dans les aérosols. Les réactions en phase aqueuse ont la possibilité de convertir ces espèces en espèces plus stables, un cas classique est l'oxydation du soufre (IV) en soufre (VI). De plus, les réactions en phase aqueuse peuvent conduire à la production d'espèces moins solubles qui retournent dans la phase gazeuse, en changeant la composition gazeuse de l'atmosphère ainsi que sa capacité oxydante. Les réactions en phase aqueuse contribuent aussi à la conversion des espèces organiques. En effet, leur solubilité augmente avec leur oxydation dans l'atmosphère, et elles finissent par être lessivées par la phase aqueuse.

#### 2.1.3.1. Chimie des $\text{HO}_x$ et métaux de transition

En ciel clair, la chimie associée aux  $\text{HO}_x$  ( $\text{HO}$  et  $\text{HO}_2$ ) est responsable de la production d'ozone, mais en présence de nuages, cette chimie sera perturbée directement par le lessivage des  $\text{HO}_x$  par les gouttes, et indirectement par la réactivité chimique en phase aqueuse. Les mesures en laboratoire et les études de modélisation montrent que le radical  $\text{HO}_2$  est lessivé de façon efficace par les gouttes de nuage à cause de sa dissociation acide base qui augmente sa solubilité dans l'eau.

La forme basique du radical  $\text{HO}_2$  dans l'eau est l'ion superoxyde  $\text{O}_2^-$ , avec un pKa de 4,7, qui tend à produire avec  $\text{HO}_2$  sous forme aqueuse du peroxyde d'hydrogène. Le lessivage du  $\text{HO}_2$  gazeux supprime la production d'ozone par la conversion de NO en  $\text{NO}_2$  par  $\text{HO}_2$ . NO n'étant pas soluble, la réaction de production de  $\text{NO}_2$  par NO et  $\text{HO}_2$  n'existe pas en phase aqueuse. De même le lessivage de  $\text{HO}_2$  ralentit la perte d'ozone par la réaction gazeuse de l'ozone avec  $\text{HO}_2$ , qui produit un radical OH, mais en phase aqueuse, l'ion superoxyde détruit l'ozone très efficacement en produisant un radical OH (Lelieveld et Crutzen, 1991). D'autres puits nets importants pour le radical  $\text{HO}_2$  sont les réactions de l'ion superoxyde avec le fer (II) et (III), et surtout avec le cuivre (I) et (II) (Deguillaume et al., 2004).

Pour le radical OH, les principales sources en phase aqueuse sont le transfert depuis la phase gazeuse, la réaction de l'ion superoxyde avec l'ozone, la photolyse du fer (III), les réactions de Fenton du  $\text{H}_2\text{O}_2$  avec le fer (II) et le cuivre (I) et la photolyse du peroxyde d'hydrogène et de l'ion nitrate (Leriche et al., 2000 ; Deguillaume et al., 2004). Notons que le rôle de la réaction de Fenton dans la production de radicaux OH est actuellement controversé et reste à démontrer (Deguillaume et al., 2005a)

### 2.1.3.2. Chimie du soufre

Les composés soufrés sont directement liés au problème des pluies acides, donc à la conversion du soufre (IV) en soufre (VI). Le soufre (IV) présent dans les gouttelettes provient du lessivage du dioxyde de soufre qui se dissocie en ion sulfite ( $\text{SO}_3^{2-}$ ) et bisulfite ( $\text{HSO}_3^-$ ). De nombreuses campagnes de mesures ont mis en évidence l'oxydation du soufre (IV) (sulfites) en soufre (VI) (sulfates). L'oxydation du dioxyde de soufre lessivé dans les gouttelettes par le peroxyde d'hydrogène aboutit à la formation de sulfates, c'est une voie prépondérante de conversion du soufre, qui dépend du pH de la solution (Warneck, 2000). D'un point de vue général, tous les peroxydes peuvent oxyder le soufre (IV) en soufre (VI). Le radical OH, ainsi que l'acide pernitrique aboutissent aussi à oxyder le soufre (IV) en soufre (VI), Leriche et al., (2000) prédisent même une contribution dominante de cette réaction dans la formation de sulfate dans une atmosphère polluée, avec un mécanisme sans métaux de transition. Warneck (2000) calcule que cette voie d'oxydation du soufre est une des plus importantes.  $\text{HNO}_4$  étant un acide faible de pKa d'environ 5,8 (Logager et Sehested, 1993), pour un pH au dessus du pKa, l'oxydation du soufre (IV) par  $\text{HNO}_4$  devient moins importante. Un autre oxydant important du soufre (IV) est l'ozone, qui réagit rapidement avec l'ion bisulfite et plus lentement avec l'ion sulfite (Hoffmann, 1986), cependant, à pH élevé, l'ozone est rapidement détruit par la base conjugué de  $\text{HO}_2$ , l'ion superoxyde prépondérant par rapport à  $\text{HO}_2$  pour les pH supérieurs à 5.

### 2.1.3.3. Chimie des composés azotés

Les composés azotés, en particulier les  $\text{NO}_x$  ( $\text{NO}$ ,  $\text{NO}_2$ ) et les  $\text{NO}_y$  (tous les composés oxydes d'azote sauf NO), sont des acteurs primordiaux de la pollution atmosphérique. Les  $\text{NO}_x$  sont directement liés à la production d'ozone, et, selon leur concentration dans l'atmosphère, l'ozone sera détruit ou produit en présence de COV (Composés Organiques Volatils). L'acide nitrique est produit en présence de concentrations élevées de  $\text{NO}_x$ , il est l'un des principaux responsables de l'acidification des pluies. Comme on l'a dit précédemment pour le NO, les  $\text{NO}_x$  ne sont pas solubles, mais la présence de nuages peut perturber la chimie des  $\text{NO}_x$  en phase gazeuse via les composés azotés solubles tels que le  $\text{N}_2\text{O}_5$ , les acides nitriques et nitreux ( $\text{HNO}_2$ ), l'acide pernitrique et le PAN.

L'acide nitrique est un acide fort, il est donc très soluble et lessivé massivement par les hydrométéores liquides et les aérosols humides. Il est produit en phase gazeuse en présence de fortes concentrations de  $\text{NO}_x$  et aboutit à acidifier les précipitations (Calvert et al., 1985). En phase

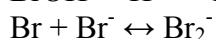
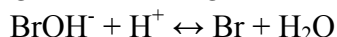
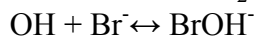
aqueuse il est essentiellement sous la forme de l'ions nitrate qui se photolysent en produisant le radical OH (Graedel et Weschler, 1981), cette source de OH est significative si la concentration en nitrate est élevée.

L'acide nitreux est un acide faible, qui se dissocie dans l'eau en formant l'ion nitrite ( $\text{NO}_2^-$ ) avec un pKa de 3,4. L'acide nitreux et l'ion nitrite se photolysent en phase aqueuse pour former du OH, mais la solubilité faible de l'acide nitreux fait que cette source de OH est secondaire (Warneck, 2000 ; Herrmann et al., 2000, Leriche et al., 2000). Enfin, l'ion nitrite est oxydé par l'ozone pour former l'ion nitrate.

L'acide pernitrique est thermiquement instable, cependant, la température des nuages est souvent assez basse pour favoriser sa formation. Il a une solubilité élevée, similaire à celle du peroxyde d'hydrogène, et comme ce dernier il est efficacement lessivé par les nuages et les aérosols humides. En phase aqueuse il se dissocie en ion  $\text{NO}_4^-$  avec un pKa de 5,8. Cet ion est instable et se décompose en ion nitrite (Logager et Sehested, 1993). De plus, l'acide pernitrique est très réactif avec l'ion sulfite qu'il oxyde en formant de l'acide nitrique et de l'acide sulfurique, cette réaction peut avoir une part importante dans l'acidification de l'eau nuageuse, puis des précipitations, selon le milieu environnemental et le pH du nuage (Leriche et al., 2000, 2003). Warneck (2000) calcule que cette réaction contribue pour 30% à la formation d'acide nitrique.

### 2.1.3.4. Chimie des halogènes

Les halogènes sont les éléments de la colonne 17 sur le tableau périodique des éléments. La chimie des halogènes en phase aqueuse troposphérique est essentiellement importante dans la couche limite marine. La chimie du brome dans la phase aqueuse aboutit à la perte catalytique d'ozone gazeux due à la volatilisation de  $\text{Br}_2$ , provenant des aérosols marins dans la couche limite marine (Jacob, 2000), mais les mécanismes réactionnels de ce cycle sont incertains. Les espèces impliquées sont les radicaux  $\text{BrO}_x$ . La chimie du brome en phase aqueuse est un précurseur de la formation du radical  $\text{Br}_2^-$ , qui participe à l'oxydation des COVs oxygénés. Le mécanisme de production des radicaux  $\text{Br}_2^-$  est le suivant :



De nombreuses mesures ont mis en évidence une concentration élevée en atome de chlore dans la couche limite marine (Keene et al., 1990 ; 1998). Ce chlore est susceptible de détruire l'ozone tout comme les atomes de brome, mais leur efficacité est diminuée par leur réactivité vis-à-vis du méthane (Jacob, 2000). La provenance des ces atomes de chlore depuis les aérosols marins est aujourd'hui encore inconnue. Comme pour le brome, la chimie du chlore en phase aqueuse est un précurseur de radicaux  $\text{Cl}_2^-$  participant à l'oxydation des COVs oxygénés. Le mécanisme de formation de ces radicaux est identique à celui des radicaux  $\text{Br}_2^-$ , cependant, le radical  $\text{Cl}_2^-$  ayant un plus grand potentiel redox que  $\text{Br}_2^-$ , il est plus réactif et peut jouer un rôle non négligeable dans l'oxydation des COVs oxygénés en phase aqueuse atmosphérique (Herrmann et al., 2000).

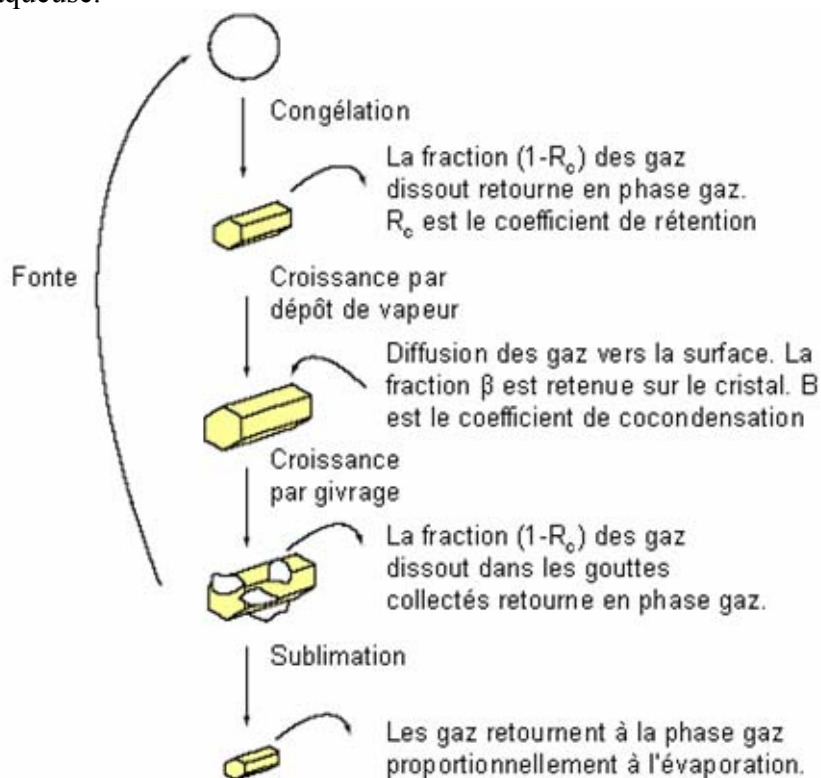
### 2.1.3.5. Chimie des composés organiques volatils

Dans la phase aqueuse atmosphérique, la réactivité des composées organiques volatiles est assez mal connue. La connaissance des mécanismes réactionnels porte pour l'instant essentiellement sur les composés à un et deux atomes de carbone. La majorité des COVs qui existent dans l'atmosphère sont des COVs oxygénés, tels que les acides carboxyliques, les composés carbonylés, les alcools et les hydroperoxydes organiques. Ils sont susceptibles de réagir dans la phase aqueuse du fait de leur grande solubilité (Graedel et Weschler, 1981). D'un point de vue général, les COVs ont un rôle important dans l'atmosphère pour la formation de l'ozone, qui

est favorisée quand leur concentration est élevée (Warneck, 2000). Les COVs jouent également un rôle sur la formation d'acides dans la phase aqueuse, depuis la formation d'acides carboxyliques et via la réactivité des peroxydes organiques avec le soufre (IV) aboutissant à la formation d'acide sulfurique. Les COVs oxygénés en phase aqueuse produisent aussi du peroxyde d'hydrogène par oxydation, via le  $\text{HO}_2$ . Les radicaux présents dans la phase aqueuse atmosphérique susceptibles d'oxyder les COVs sont les radicaux OH, nitrate, sulfate,  $\text{Cl}_2^-$  et  $\text{Br}_2^-$  (Herrmann et al, 2000).

## 2.2. Chimie spécifique aux nuages mixtes

L'existence de cristaux de glace dans les nuages introduit de nombreuses modifications microphysiques et chimiques par rapport aux nuages chauds. En effet, durant leur congélation par givrage ou par congélation homogène, les hydrométéores liquides sont amenés à céder une partie de leurs gaz dissous en vertu du fait que la solubilité dans la glace est souvent plusieurs ordres de grandeurs plus faible que dans l'eau. Des échanges d'espèces chimiques entre phases se produisent aussi lors du dépôt de vapeur, et de l'évaporation. La présence d'hydrométéores glacés dans un nuage modifie donc la distribution spatiale des espèces chimiques en modifiant les caractéristiques microphysiques du nuage ainsi que sa capacité précipitante. Les hydrométéores glacés modifient aussi la réactivité chimique atmosphérique, la glace agissant comme un piège momentané pour les espèces retenues. De plus, à la surface de la glace et à l'intérieur de cette dernière, des réactions particulières peuvent se produire. La figure (14), présente rapidement les mécanismes de croissance de la glace et les effets sur la chimie qui sont associés à ces mécanismes microphysiques selon Yin et al. (2002). Les paragraphes suivant décrivent plus précisément les effets sur la chimie associée à cette microphysique et les principaux travaux de mesure et de modélisation existant sur ce sujet. Finalement, l'incorporation des aérosols dans les hydrométéores glacés sera brièvement discutée puisque les espèces dissoutes provenant des aérosols jouent un rôle important dans la chimie en phase aqueuse.



**Figure 14 : Redistribution des gaz par les processus de croissance des cristaux dans un nuage mixte. D'après Yin et al. (2002).**



### 2.2.1. Rétention des espèces chimiques lors du givrage

Le givrage des gouttelettes et gouttes de pluie sur les hydrométéores glacés est un mécanisme fondamental de croissance des hydrométéores glacés et de redistribution de l'eau entre les différentes catégories d'hydrométéores. D'un point de vue chimiques, nous savons depuis longtemps que ce givrage s'accompagne du dégazage d'une partie plus ou moins importante des espèces chimiques contenues en solution dans l'hydrométéore liquide d'origine (Iribarne et al., 1983). Ce dégazage s'effectue en plus ou moins grande proportion, dépendant de la nature des espèces chimiques en solution et des conditions de croissance (Jaccard et Levi., 1961 ; DeMicheli et Iribarne, 1963 ; Iribarne et Pyshnov, 1990). D'une manière générale, la solubilité d'un gaz dans la glace est très inférieure à celle de ce même gaz dans l'eau, ce qui signifie que le réseau cristallin ne peut incorporer la totalité des gaz dissous dans les hydrométéores liquides. Il en résulte une exclusion des solutés sur le front de progression de la glace, exclusion qui enrichit la solution aqueuse restante au fur et à mesure de la progression de la glace (Voisin, 1998). Cependant la dynamique de congélation influe sur la capture des gaz solubles dans la phase glacée lors du givrage. En effet, la congélation de gouttelettes surfondues s'effectue en deux étapes, une première très rapide, où les échanges de chaleur avec l'extérieur peuvent être négligés, que nous appelons 'adiabatique', et une seconde phase, plus lente, contrôlée par les échanges de chaleur entre la gouttelette et l'extérieur appelée 'diabatique'. La capture des espèces chimiques dans le réseau cristallin semble particulièrement efficace durant la phase initiale de congélation adiabatique, soit la congélation de l'eau due à la capacité calorifique de l'eau surfondue, ne nécessitant pas d'échange de chaleur avec l'air environnant, (Pruppacher et Klett, 1978). En effet, pendant cette période durant laquelle la croissance de la glace au détriment de l'eau liquide est particulièrement rapide, la capture des gaz dissous dans la partie congelée de la goutte est favorisée avant qu'ils ne progressent par diffusion vers la surface de la goutte, et qu'ils ne franchissent l'interface goutte atmosphère. L'autre type de congélation, la congélation diabatique, se produit dans un second temps, lorsque l'hydrométéore en court de congélation est à 0°C, et que l'échange d'énergie avec l'air ambiant pilote la vitesse de congélation. Stuart et al. (2003) ont calculé que le temps de la congélation diabatique est d'un ordre de grandeur plus grand que celui de la congélation adiabatique, excepté pour les plus petites gouttelettes ( $\leq 1 \mu\text{m}$ ). Le processus de dégazage durant le givrage ne se fait donc pas à l'équilibre thermodynamique (Lamb et al., 1987). De plus, la diffusion des espèces chimiques au sein du cristal de glace est plusieurs ordres de grandeurs plus faible que la diffusion dans l'eau liquide, et on considère que même si la distribution des espèces chimiques entre la phase glacée et la phase gazeuse n'est pas à l'équilibre, elle se maintient (Sommerfeld et al., 1998 ; Thibert et Dominé, 1998). Les études de laboratoire montrent d'ailleurs que les concentrations obtenues dans la glace ne correspondent pas à celles de l'équilibre thermodynamique qui donnerait des concentrations bien plus faibles dans les cristaux, de plus, la volatilité des espèces chimiques doit être prise en compte.

En effet, on peut distinguer dans la solution les parties volatiles et non volatiles. Les secondes, telles le chlorure de sodium, passent entièrement de l'hydrométéore liquide à l'hydrométéore glacé durant le givrage, alors que les premières s'évaporent plus ou moins du fait du déplacement de l'équilibre liquide/gazeux provoqué par une augmentation progressive des concentrations chimiques dans la partie liquide restante au fur et à mesure que la congélation de l'hydrométéore liquide impacté se produit (Iribarne et Pyshnov, 1990). Pour les espèces non solubles, cette propriété de la glace en croissance amène à de fortes inhomogénéités de la concentration chimique au sein de l'hydrométéore formé, même si la concentration totale de l'espèce dans l'hydrométéore glacé est la même que dans la gouttelette d'origine (Pfann, 1966).

Les modèles de chimie nuageuse doivent prendre en compte ces transferts d'espèces chimiques volatiles entre les différentes phases lors du givrage, Pour cela nous devons connaître la quantité de l'espèce chimique considérée retenue au sein de l'hydrométéore durant le givrage par rapport à la quantité totale présente dans la goutte d'eau avant sa congélation. Ce rapport est appelé

coefficient de rétention, il est par définition compris entre zéro et un : zéro si l'intégralité de l'espèce chimique dégaze lors de la congélation, un si la totalité de l'espèce reste piégée dans l'hydrométéore glacé formé. Le coefficient de rétention est fonction de nombreux paramètres physiques et chimiques.

Les études expérimentales sur le coefficient de rétention sont peu nombreuses, que ce soit des études de laboratoire : Iribarne et al. (1983), Lamb et Blumenstein. (1987), Iribarne et Pyshnov. (1990a, 1990b), Iribarne et Barrie. (1995), ou sur le terrain : Snider et al. (1992), Snider et Huang. (1998) et enfin Voisin et al. (2000). Ces études se sont portées sur quelques espèces chimiques prépondérantes dans la chimie atmosphérique :  $\text{SO}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}_2$  (peroxyde d'hydrogène),  $\text{NH}_3$  (ammoniac),  $\text{HNO}_3$  (acide nitrique),  $\text{HCl}$ ,  $\text{HCOOH}$  (acide formique),  $\text{CH}_3\text{COOH}$  (acide acétique), en fonction de différentes variables physiques : pression, température, ventilation, taille des gouttes, mais aussi chimiques tels que le pH, la concentration en phase aqueuse et gazeuse, la constante de Henry effective.

Lamb et Blumenstein (1987) se sont intéressés au coefficient de rétention d'une espèce soluble particulière, au rôle prépondérant sur les pluies acides : le dioxyde de soufre. Ils ont effectué des mesures de dégazage du  $\text{SO}_2$  sur des gouttelettes de l'ordre de quelques microns à 20  $\mu\text{m}$  de diamètre, tailles classiques des gouttelettes continentales, givrantes à des gammes de températures où les gouttelettes sont fréquentes dans la nature, de  $-2^\circ\text{C}$  à  $-20^\circ\text{C}$ . La rétention s'est avérée d'autant plus intense que la température était faible, mettant en évidence une relation entre rétention et température. Il a donc été possible d'établir une relation entre rétention et température pour le  $\text{SO}_2$  à l'aide d'une régression linéaire sur les points mesurés. Cette relation est de la forme :

$$R_c = a + b(T_0 - T) \quad (25)$$

Avec  $a=0,012$  ;  $b=0,0058$  ;  $T_0=273\text{ K}$  et  $T$  est la température de l'air et  $R_c$  est le coefficient de rétention.

Cependant d'autres mesures du coefficient de rétention du dioxyde de soufre ont été effectuées par Iribarne et al (1990b) pour des gouttelettes de plus grande taille (diamètre moyen de 39  $\mu\text{m}$ ) et sous des concentrations gazeuses de  $\text{SO}_2$  de l'ordre de quelques ppbv à cent ppbv (valeurs très supérieures à celles des atmosphères polluées aboutissant à des pH bas, de l'ordre de 2,3 à 3,1), contre moins d'un ppbv pour Lamb et Blumenstein (1987). Ils ont obtenu une valeur de 0,62 pour le coefficient de rétention, indépendant de la température. On constate un écart très important avec le résultat précédent, ne dépassant pas 0,2 à  $-30^\circ\text{C}$ . Les mesures d'Iribarne et al. (1990b) montrent qu'il n'y a pas, dans leurs gammes de concentrations en dioxyde de soufre gazeux, d'influence de cette concentration sur le coefficient de rétention. Iribarne et al (1990b) proposent l'écart de taille des gouttelettes considérées dans les deux études comme explication possible de cette importante différence.

Le tableau (1) propose quelques valeurs de coefficients de rétention proposés dans la littérature.

Le coefficient de rétention est donc une grandeur encore mal documentée (Stuart et al., 2006), fonction de nombreux paramètres, comme la température, la ventilation, la nature et la concentration de l'espèce chimique, le diamètre des gouttelettes, le pH (Stuart et al., 2003 ; 2006). Cependant, pour certaines espèces, les mesures apportent plus de certitudes : pour l'acide chlorhydrique, Iribarne et al. (1990a) ont mesuré des coefficients de rétention très élevés, toujours supérieurs à 0,99,  $\text{HCl}$  est presque totalement retenu dans la glace durant le processus de congélation. Pour l'acide nitrique ( $\text{HNO}_3$ ), Iribarne et al. (1990a) ont également mesuré un coefficient de rétention très proche de un, confirmé par les mesures in situ de Voisin et al. (2000) pour  $\text{HCl}$ ,  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{NH}_3$ . L'explication d'un tel coefficient de rétention donné par Iribarne et al. (1990a) est la même pour les deux acides : une pression partielle dans la phase gazeuse très faible à l'équilibre avec la phase aqueuse (en prenant en compte la solubilité et la dissociation de l'espèce,

soit l'équilibre de Henry effectif) empêche ces acides de gagner l'atmosphère lors de la congélation des gouttelettes. Le givrage s'avère être le principal mécanisme d'incorporation de ces gaz hautement solubles dans les cristaux de glace, leur concentration gazeuse étant faible, leur capture par diffusion provenant de la phase gazeuse est négligeable. En ce qui concerne les espèces moins solubles, telles que les acides carboxyliques, le givrage contribue moins à la concentration observée dans les cristaux de glace, car leur concentration élevée dans la phase aqueuse (proche de l'équilibre thermodynamique avec la phase gazeuse) favorise le dégazage lors du givrage. D'un point de vue général, il semble que dans la basse troposphère, là où l'on trouve des nuages mixtes riches en eau surfondue, les mécanismes principaux de redistribution et de lessivage des espèces chimiques sont ceux faisant interagir les hydrométéores glacés et liquides, bien plus que les échanges directs entre la phase gazeuse et la phase glacée (Audiffren et al., 1999).

Stuart et al. (2003) ont développé une théorie pour évaluer le coefficient de rétention permettant de prendre en compte les aspects physiques et chimiques contrôlant cette valeur pour les espèces chimiques suivantes :  $\text{SO}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}_2$ ,  $\text{NH}_3$ ,  $\text{HNO}_3$ . Cette étude se focalise sur le givrage sec, c'est-à-dire due à la collision de gouttelettes sur des hydrométéores totalement glacés, sans présence d'un film liquide autour de ces derniers. L'idée de base de cette théorie et de rechercher les temps caractéristiques de chaque mécanisme physico-chimique ayant un impact sur le givrage et la rétention. Les deux temps caractéristiques qui entrent en compétition sont le temps de congélation ( $\tau_{\text{fz}}$ ), et le temps d'expulsion (dégazage) ( $\tau_{\text{exp}}$ ) de l'espèce chimique, eux-mêmes contrôlés par plusieurs mécanismes physico-chimiques : les temps caractéristiques de transfert à travers l'interface air/eau, de transport dans la phase aqueuse vers l'interface eau/air, de la congélation adiabatique et de la congélation diabatique. Stuart et al. (2003) ont défini une grandeur sans dimension appelée indicateur de rétention :  $\tau_{\text{exp}}/\tau_{\text{fz}}$ . Si cet indicateur de rétention est très supérieur à un, le temps d'expulsion est très long par rapport au temps de congélation, et nous sommes dans le cas où une très faible partie du contenu de l'espèce chimique considérée a le temps de passer dans la phase gazeuse avant la congélation complète de la gouttelette, ce qui équivaut à un taux de rétention proche de un. Dans le cas contraire, si l'indicateur de rétention est très inférieur à un, le temps caractéristique de la congélation est très supérieur à celui du dégazage, ce qui est caractéristique des cas où la plus grande partie de l'espèce chimique a le temps de passer dans la phase gazeuse avant la congélation complète de la gouttelette, soit un taux de rétention proche de zéro. Enfin, lorsque l'indicateur de rétention est proche de un, ce taux de rétention est un paramètre sensible qu'il faut étudier plus précisément.

Dans certains cas, la congélation adiabatique peut amener à la formation très rapide d'une 'carapace' de glace autour de la gouttelette en cours de congélation, empêchant le dégazage des espèces chimiques, ce qui est dû à la congélation adiabatique (Stuart et al., 2003), dans d'autre cas, la congélation adiabatique n'est pas assez intense pour former cette 'carapace' de glace, et l'interface eau liquide/air perdure jusqu'à la congélation totale de la gouttelette par congélation diabatique, dont le temps caractéristique est très supérieur à celui de la congélation adiabatique. Stuart et al. (2003) ont quantifié l'indicateur de rétention pour les espèces citées précédemment en faisant varier un à un et indépendamment les uns des autres : le diamètre des gouttelettes (avec dix différents diamètres, de 1  $\mu\text{m}$  à 2 mm), la vitesse de chute de l'hydrométéore dans l'air, la température, la pression, le pH (effet sur la constante de Henry effective), le coefficient d'accommodation gaz/gouttelette, et les différentes diffusivités, le tout dans des gammes réalistes pour l'atmosphère. Les conclusions de Stuart et al. (2003) sont que le facteur limitant de la croissance de la glace est dans presque tous les cas (gouttelettes > 1  $\mu\text{m}$ ) la congélation diabatique, alors que pour le dégazage lui-même, la constante de Henry effective semble être un paramètre déterminant contrôlant la vitesse de transfert des gaz solubles. Pour les espèces très solubles, le transfert dans la phase gaz est le facteur limitant, alors que pour les espèces très volatiles et celles qui ne se dissocient pas, le transfert dans la phase aqueuse est le facteur limitant.

D'une manière générale, la rétention lors du givrage n'a pas été abordée dans le cas d'une croissance humide avec la présence continue d'un film liquide autour de l'hydrométéore en croissance, et les résultats de Stuart et al. (2003) ne peuvent être appliqués à la croissance humide. De plus, Voisin (1998) et Audiffren et al. (1999) insistent sur le fait que la concentration au sein des gouttelettes en général, et des gouttelettes en cours de givrage en particuliers, ne sont pas forcément à l'équilibre de Henry, il suffit pour cela que le temps caractéristique d'une réaction de l'espèce considérée soit plus petit que le temps de mise à l'équilibre.

**Tableau 1 : Coefficients de rétention utilisés dans la littérature.**

Espèces	Coefficient de rétention	Référence	Type
SO <sub>2</sub>	0,012+0,0058ΔT 0,25+0,012ΔT 0,62 0,019 +/- 0,012	Lamb et Blumenstein, 1987 Iribarne et al, 1990 Iribarne et Barrie, 1995 Voisin (1998)	Laboratoire Laboratoire Laboratoire
H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	1 0,24 0,05	Iribarne et Pyshnov, 1990 Snider et al. 1992 Snider et Huang, 1998	Laboratoire Terrain Terrain
HCl, HNO <sub>3</sub> , NH <sub>3</sub>	1	Iribarne et Pyshnov, 1990	Laboratoire

Plusieurs études de modélisation montrent que les taux de rétention associés au givrage des hydrométéores liquides peuvent significativement modifier la distribution des espèces chimiques dans la troposphère et leur lessivage (Cho et al., 1989 ; Chen et Lamb, 1990 ; Wang et Chang, 1993 ; Audiffren et al., 1999, Mari et al., 2000 ; Barth et al., 2001 ; Yin et al., 2002). Pour Audiffren et al. (1999) la simulation d'un nuage convectif mixte 2D montre que le givrage est le mécanisme essentiel de redistribution des espèces chimiques mais il varie considérablement d'une espèce à une autre en fonction de son coefficient de rétention, mais aussi des mécanismes microphysiques prépondérants du nuage mixte. Yin et al. (2002) ont effectué des simulations de nuages convectifs mixtes avec microphysique, en faisant varier un à un les taux de rétention lors du givrage de 0 à 1 et la constante de Henry effective du gaz théorique simulé de 0 à 10<sup>9</sup>. Ces simulations ont été reproduites pour une atmosphère avec une population de CCN typique d'une masse d'air maritime et d'une masse d'air continentale. Les résultats montrent que la quantité de gaz transportée vers la haute troposphère est contrôlée par la solubilité du gaz et son coefficient de rétention. Ce transport est plus sensible à la rétention quand la solubilité est élevée et inversement, il est plus sensible à la solubilité quand le coefficient de rétention est élevé. La connaissance du coefficient de rétention est plus importante pour le cas maritime que pour le cas continental, un coefficient de rétention élevé aboutissant à un lessivage plus efficace par les précipitations dans le cas maritime.

### **2.2.2. Capture d'espèces chimiques lors du dépôt de vapeur sur la glace.**

Lors de la croissance par dépôt de vapeur des hydrométéores, une partie des gaz présents dans l'atmosphère peut être capturée, puis piégée à l'intérieur du cristal en croissance à une concentration différente de celle imposée en théorie par l'équilibre thermodynamique de l'espèce chimique au dessus de la glace, la croissance des cristaux par dépôt de vapeur étant très rapide dans les nuages convectifs (Yin et al., 2002). Ce mécanisme de capture porte le nom de cocondensation ou encore burial. Il est proportionnel à la concentration dans la phase gazeuse de l'espèce chimique considérée, c'est pourquoi l'incorporation directe des acides forts par cocondensation durant la croissance des flocons de neige est négligeable, à cause de leur faible concentration dans la phase gazeuse, elle-même due à leur constante de Henry effective très élevée (Voisin et al., 2000). Pour

Diehl et al. (1996) la capture d'espèces chimiques sur la neige par cocondensation est moins efficace que sur les gouttes, ainsi, pour une même masse d'eau, les quantités capturées par une goutte liquide sont bien supérieures à celles capturées par un cristal de glace. Plusieurs études de laboratoire, menées sur le sujet ont montré que la cocondensation dépend de l'espèce chimique, de la température, de la structure cristalline de la glace en croissance, de la pression partielle de l'espèce et de l'acidité de la surface (Clapsaddle et Lamb., 1989 ; Valdez et al., 1989). Cependant l'absence de théorie permettant de bien décrire ce mécanisme de cocondensation en fonction de ces différents facteurs empêche d'introduire efficacement ce mécanisme dans les modèles de chimie nuageuse (Yin et al 2002). Ullerstam et al (2005) ont mesuré en laboratoire la capture de l'acide nitrique sur les cristaux de glace dans les conditions de la troposphère libre. Leur expérimentation montre que les cristaux de glace en croissance piègent bien plus efficacement l'acide nitrique que des cristaux à l'équilibre (100% de RH par rapport à la glace), la désorption est d'autant plus limitée que le taux de croissance par dépôt de vapeur est élevé, de plus ils montrent que l'acide nitrique semble coexister sous un état dissocié dans la glace. On notera que l'incorporation d'espèces chimiques dans la glace ne se fait pas uniquement pendant la phase de croissance des cristaux, mais aussi une fois le cristal formé, par la mise à l'équilibre thermodynamique de l'espèce considérée entre les phases par l'adsorption du gaz sur le cristal, suivie de la diffusion vers l'intérieur du cristal (cf. 2.2.3).

D'un point de vue modélisation, la probabilité de capture des espèces chimiques durant la croissance de la glace est approximée par Yin et al. (2002) comme étant proportionnelle au rapport entre le temps de résidence de la molécule à la surface de la glace, et le temps que va mettre le dépôt de vapeur pour recouvrir cette molécule, et ainsi la piéger. Ils définissent ainsi un coefficient  $\beta$  appelé 'burial efficiency', ou coefficient de cocondensation. Si  $\beta=1$ , l'ensemble des molécules se déposant sur la glace sont piégées, si  $\beta < 1$ , cela signifie que les forces de liaison permettant à l'espèce chimique de rester sur la glace sont faibles, ce qui permet la désorption (Yin et al. 2002). Valdez et al. (1989) ont montré, pour le dioxyde de soufre, que l'incorporation du gaz dans le cristal en croissance par dépôt de vapeur est directement proportionnelle à la masse de vapeur déposé, c'est l'incorporation par cocondensation (Sigg et al. 1992 ; Dominé et al., 1996). La capture de gaz par dépôt sur la glace est donc proportionnelle au dépôt de vapeur et à un coefficient ( $\beta$ ) rendant compte de la force de cohésion entre la glace et le gaz considéré. Crutzen et Lawrence (2000) ont effectué un test de sensibilité sur la cocondensation en introduisant la notion de constante de Henry pour la phase glacée, proportionnelle à la constante de Henry classique en phase aqueuse. Cette inclusion eut pour effet d'étendre vers les hautes altitudes la zone de lessivage des espèces chimiques. Yin et al. (2002) ont effectué des tests de sensibilité sur  $\beta$ , et ont montré que l'impact maximum de la variation de cette variable de zéro à un est de l'ordre de 30% sur l'abondance des gaz dans la région du sommet du nuage contre un facteur douze pour le même test de sensibilité pour le coefficient de rétention  $R_c$ . Ils concluent donc que le transport vertical des gaz est assez peu sensible à la capture directe des gaz pendant la croissance par dépôt de vapeur des cristaux (Yin et al., 2002).  $\beta$  semble ainsi être un paramètre d'importance secondaire par rapport à la rétention dans la chimie des nuages convectifs mixtes. Kärcher et al. (2004) présentent un modèle dont le but est d'évaluer l'efficacité de capture des gaz minoritaires par les cristaux de glace, prenant en compte un maximum de critères cinétiques et thermodynamiques lors des phases de croissance et d'évaporation des cristaux de glace. Ces critères sont la température, la taille des cristaux, leur taux de croissance, le coefficient de diffusion du gaz dans l'air, l'accommodation et la désorption des gaz à la surface des cristaux en croissance, le rejet des espèces chimiques incluses dans la glace lors de son évaporation. Les considérations dynamiques sont importantes car elles imposent aux cristaux de très nombreux cycles de condensation évaporation, comme c'est le cas dans les nuages réels. Kärcher et al. (2006) ont simulé la capture de l'acide nitrique gazeux lors de la croissance des cristaux de glace à l'aide de ce modèle en utilisant les données de mesures *in situ* effectuées dans les cirrus pour déterminer empiriquement leur paramètre d'adsorption et de temps

de résidence de l'acide nitrique à la surface de la glace par rapport à la croissance des cristaux par diffusion de vapeur. Les mesures montrent que le ratio  $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$  dans la glace augmente quand la température diminue. Kärcher et al. (2006) interprètent cela à l'aide de leur modèle en faisant l'hypothèse que le temps de résidence des molécules d'acide nitrique à la surface de la glace est favorisé par les basses températures. L'évolution de l'acide nitrique à la surface du cristal de glace diffère selon la température. En dessous de environ 203 K le temps de résidence des molécules d'acide nitrique sur le cristal de glace est long devant la condensation d'une nouvelle couche de molécule d'eau, et la cocondensation est efficace. Au dessus de 203 K, la stabilité de l'acide nitrique sur la glace est moindre, ce qui cause un retour rapide de l'acide nitrique dans la phase gazeuse, et une moindre capture en dépit d'une croissance plus rapide des cristaux de glace. Cependant, le modèle de Kärcher et al. (2004) ne prend pas en compte la capture associée à la réactivité chimique à la surface de la glace qui est un facteur influençant le mécanisme d'adsorption qui sera développé en (2.2.4 chapitre 1).

### 2.2.3. Adsorption d'espèces chimiques dans la glace

Une fois le cristal de glace formé, l'incorporation peut aussi se produire sans croissance de la glace : il y a alors adsorption à la surface du cristal suivit de diffusion à l'intérieur de ce dernier, jusqu'à ce que l'équilibre soit atteint entre la concentration en phase gazeuse et dans le cristal. Cependant, les températures qui règnent dans la troposphère, le plus souvent supérieures à  $-30^\circ\text{C}$ , rendent la surface de la glace très dynamique, à tel point que l'on parle de couche quasi-liquide (Adamson, 1970 ; Valdez et al., 1989 ; Sommerfeld et Lamb, 1986). Ainsi, les données obtenues à très basses températures (dans le cadre de l'étude des nuages stratosphériques polaires et de leur incidence sur la couche d'ozone stratosphérique) ne sont pas adaptées aux températures de la troposphère, la surface des cristaux de glace étant bien moins dynamique aux températures stratosphériques. D'un point de vue thermodynamique, si les données sur l'équilibre de Henry sont nombreuses et bien documentées pour l'incorporation des gaz dans l'eau, elles sont beaucoup plus rares sur l'incorporation des gaz dans les cristaux de glace par adsorption. Seuls les acides chlorhydrique et nitrique sont bien documentés (Thibert et Dominé, 1997 ; Thibert, 1996).

L'incorporation du gaz s'arrête lorsque la pression partielle du gaz considéré est à l'équilibre au dessus de la glace, cependant, la vitesse de diffusion du gaz dans la glace peut être très lente et dans ce cas constituer un facteur limitant. Ainsi, Dominé et Thibert (1996) proposent un mécanisme où le facteur limitant de l'incorporation de l'acide chlorhydrique est la diffusion dans la glace, alors que pour l'acide nitrique, dont la vitesse de diffusion dans la glace est 50 fois supérieure à celle de HCl, la concentration est déterminée par l'équilibre thermodynamique.

D'un point de vue général, les hydrométéores glacés sont rarement à l'équilibre mais sont plutôt soit en phase de croissance soit en phase d'évaporation à l'exception des cirrus et des nuages stratosphériques polaires. Ainsi pour l'étude des nuages mixtes, les processus d'adsorption peuvent être considérés comme négligeables dans un premier temps. Mitra et al. (1990) ont effectués des études de laboratoire sur l'adsorption du  $\text{SO}_2$  par des cristaux de glace durant la croissance de cristaux de glace par dépôt de vapeur et sur des cristaux ayant cessé leur croissance. Ils ont observé que la fraction capturée de  $\text{SO}_2$  devient négligeable quand le cristal cesse de croître. Diehl et al. (1996) insistent sur le fait que la capture d'espèces chimiques par adsorption est moins rapide que la capture par les gouttes. Fries et al. (2006), se sont intéressés à l'adsorption des hydrocarbures aromatiques sur des cristaux à l'équilibre thermodynamique avec la vapeur. Ils concluent que l'adsorption de ces espèces à  $-20^\circ\text{C}$  est soit négligeable soit totalement réversible. Ainsi, malgré la grande surface développée des cristaux de glace, ceux-ci sont inefficaces pour lessiver les hydrocarbures aromatiques par capture à leur surface.

#### **2.2.4. Réactivité chimique à la surface et dans les hydrométéores glacés**

Certaines espèces chimiques peuvent trouver dans les hydrométéores glacés, des conditions favorables pour des réactions, ainsi il a été montré que des réactions d'hydrolyse, d'oxydation, de décomposition de peroxyde se produisent dans les hydrométéores glacés (Grant et Alburn, 1965).

D'autres réactions peuvent se produire à la surface des hydrométéores glacés. Fernandez et al. (2005) ont mesuré la cinétique du  $\text{ClONO}_2$  à la surface des hydrométéores glacés à des températures caractéristiques de la stratosphère, ils ont mis en évidence la formation de  $\text{Cl}_2$  et de  $\text{HOCl}$  par hydrolyse du  $\text{ClONO}_2$  et réaction avec  $\text{HCl}$  à la surface des cristaux. Jin et al. (2006a,b), ont mesuré en laboratoire la réactivité de  $\text{SO}_2$  et  $\text{HOX}$  (ou  $\text{X}$  représente  $\text{Cl}$  ou  $\text{Br}$ ) à la surface des cristaux de glace aux températures stratosphériques, ils concluent que la capture du  $\text{SO}_2$  à la surface des cristaux est favorisée par la présence du  $\text{HOX}$  (brome ou du chlore), en remarquant que la production de  $\text{Br}^-$  est plus efficace que celle de  $\text{Cl}^-$ . A des températures plus élevées (plus de 220K), la capture du dioxyde de soufre associée à sa réactivité avec  $\text{HOX}$  est du même ordre de grandeur que son adsorption, elle-même plus faible qu'à plus basse température. Jin et al. (2006a,b) concluent que l'oxydation du dioxyde de soufre avec  $\text{HOX}$  sur les cristaux de glace à une température supérieure à 220 K n'est pas une voie réactionnelle importante.

D'une façon générale, les études de la réactivité chimique dans la phase glace ou à la surface des cristaux sont rares et sont souvent appliquées aux températures stratosphériques. Il est donc difficile dans l'état actuel des connaissances de prendre en compte cette réactivité dans les modèles de chimie des nuages troposphériques. C'est pourquoi, cette réactivité a été négligée dans le modèle M2C2.

#### **2.2.5. Incorporation des aérosols dans les hydrométéores glacés**

Les aérosols peuvent être incorporés dans les hydrométéores glacés par plusieurs processus : lors de la nucléation hétérogène des cristaux, lors du givrage et par capture directe. Yin et al. (2005) ont effectué des simulations pour évaluer l'importance relative des différents mécanismes de lessivage des aérosols possibles dans un nuage convectif mixte asymétrique. Leur conclusion est que l'activation des gouttelettes est de très loin le mécanisme le plus efficace de capture des aérosols, de plus c'est le mécanisme le plus rapide, spécialement durant la phase initiale de développement rapide du nuage convectif. Sous le nuage, le lessivage des aérosols est dominé par la pluie et la neige roulée, cependant, le coefficient d'efficacité de collision des aérosols par la neige roulée a été paramétré comme identique à celui de la pluie, à cause du manque de données expérimentales et théoriques sur cette grandeur (Alheit et al., 1990).

Le processus de captation dynamique est surtout fonction du déplacement relatifs des hydrométéores et des aérosols, cependant les effets phorétiques (flux de chaleur et de vapeur d'eau) sont aussi à l'origine de la capture des aérosols par les hydrométéores. Des études théoriques (Miller et Wang, 1989 ; Prodi et Oraltay, 1991) et expérimentales (Song et Lamb, 1991) montrent que ces effet phorétiques favorisent la collecte des aérosols fins ( $<1\mu\text{m}$ ) par les gouttelettes et les aérosols grossiers ( $>1\mu\text{m}$ ) par les cristaux de glace. Cependant, Borys et al. (1988) ont étudié l'influence des différents mécanismes sur la composition finale de la neige en comparant les concentrations mesurées dans des collectes simultanées de neige et de givre. Ils concluent à la très faible importance du phénomène de captation dynamique de l'aérosol interstitiel, et indiquent que le givrage des cristaux est le mécanisme principal d'incorporation d'aérosols dans la neige précipitante. Voisin (1998) montre à partir des données recueillies dans les nuages mixtes que la captation dynamique des aérosols par les cristaux de glace semble en effet négligeable.





## **Chapitre 2 : Présentation de M2C2 (Model of Multiphase Cloud Chemistry), un modèle de chimie multiphase couplé à un module de microphysique**

Comme on vient de le voir, la glace tient un rôle de première importance dans l'évolution des nombreux nuages mixtes de la troposphère, que ce soit d'un point de vue purement microphysique, en modifiant l'évolution du nuage comme sa capacité à précipiter, mais aussi d'un point de vue chimique en jouant sur la redistribution des espèces entre les catégories d'hydrométéores et la phase gazeuse par la microphysique, et par la chimie spécifique à la présence de la phase glace, comme la capture d'espèces chimiques lors de la croissance de la glace par dépôt de vapeur ou la rétention d'espèces lors du givrage des hydrométéores, ainsi que la réactivité à la surface et au sein des hydrométéores glacés. La modélisation de la chimie nuageuse, appelée chimie multiphase, est globalement faiblement documentée sur les nuages chauds, et plus encore sur les nuages mixtes, alors que ceux-ci sont prépondérants.

Le but de ce chapitre est de vous présenter le modèle de chimie multiphase M2C2 dans sa dernière version, intégrant la microphysique mixte, par le biais d'un schéma semi-spectral à deux moments pour tous les types d'hydrométéores, et la chimie spécifique aux nuages mixtes. La première partie est consacrée aux ajouts apportés à la microphysique du modèle, la seconde porte sur les modifications apportées à la chimie. Dans chacune de ces parties, je fais un bref rappel sur les caractéristiques du modèle chaud développé par Maud Leriche.

Le modèle M2C2 est un modèle de chimie des nuages incluant les aérosols, couplant un module de chimie multiphase (Leriche et al., 2000, 2001, 2003 ; Deguillaume et al., 2004) et un module de microphysique des nuages mixtes quasi-spectral. D'un point de vue dynamique, le modèle M2C2 représente une parcelle d'air évoluant dans l'atmosphère selon une trajectoire forcée. L'état initial de la parcelle est défini par la température, la pression, l'humidité relative et le vent vertical. La parcelle d'air évolue ensuite le long d'une trajectoire qui est définie par le vent vertical, la hauteur de la parcelle étant donnée au départ. Le modèle calcule, durant l'évolution de la parcelle, sa température, sa pression et son humidité relative au dessus de l'eau liquide et de la glace, donc la sursaturation de la masse d'air au dessus des deux phases condensées de l'eau. Dans M2C2, les mécanismes chimiques en phase gazeuse et aqueuse sont pris en compte de façon explicite, les échanges entre phases suivent la théorie du transfert de masse selon Schwartz (1986), les réactions de photochimie en phase aqueuse et gazeuse utilisent le modèle de transfert radiatif TUV4 (Madronich et Flocke, 1999), enfin, le pH des gouttes est calculé à chaque pas de temps par la résolution de l'équation d'électroneutralité. Le système d'équations différentielles est résolu par la méthode de Gear (Gear, 1971).

Les évolutions temporelles des concentrations chimiques dans l'eau nuageuse et l'eau de pluie sont calculées explicitement en prenant en compte : les échanges entre les phases par la cinétique du transfert de masse, les productions et destructions dues à la réactivité chimique et le transfert d'espèces chimiques entre les différents types d'hydrométéores par la microphysique.

# 1. Le module de microphysique

## 1.1. Introduction

Les modèles microphysiques représentant les hydrométéores par des distributions associées à chaque type d'hydrométéores utilisent un schéma dit 'quasi-spectral' par opposition aux modèles spectraux représentant les hydrométéores par des spectres constitués de très nombreuses classes de taille sur chacune desquelles les mécanismes microphysiques s'exercent. La représentation quasi-spectrale des hydrométéores possède l'avantage d'être économique en ressource informatique par rapport aux modèles spectraux, elle constitue donc l'approche classique pour représenter les nuages dans les modèles à trois dimensions. Les nuages chauds sont généralement représentés par deux distributions d'hydrométéores, une pour l'eau non précipitante, les gouttelettes nuageuses, et une pour la pluie. L'introduction de la glace nécessite de choisir un certain nombre de types d'hydrométéores. Certaines paramétrisations de la glace comportent deux catégories d'hydrométéores glacés (Rutledge et Hobbs, 1983 ; Cotton et al., 1982), trois (Lin et al., 1983 ; Rutledge et Hobbs, 1984 ; Ziegler, 1985) quatre (Ferrier, 1994), ou même cinq (Walko et al., 1995). Mc Cumber et al. (1991) ont évalué l'impact du nombre de catégories de cristaux et ont conclu que au moins trois types différents de glace sont nécessaires pour représenter les cas précipitants les plus couramment rencontrés. En général, un schéma microphysique glacé comporte la glace primaire, ou pristine, issue de la nucléation hétérogène, les agrégats et les flocons qui correspondent aux gros cristaux partiellement givrés ou aux assemblages secs et une troisième catégorie plus givrée et plus dense appelée neige roulée, gouttes gelées ou grêle selon la densité des cristaux. C'est l'option que nous avons choisie dans le modèle M2C2.

L'autre point de discussion porte sur le nombre d'équations pronostiques pour représenter l'évolution en nombre et en rapport de mélange des cristaux de glace. Pour traiter la chimie des nuages, un bon compromis entre un coût informatique élevé et une représentation correcte de la dépendance des processus de lessivage à la taille et à la forme des hydrométéores, est de considérer une paramétrisation quasi-spectrale avec, pour chaque type d'hydrométéore, une ou deux équations pronostiques.

A l'époque où les ressources informatiques étaient plus limitées, les schémas microphysiques suivaient le plus souvent l'approche de Kessler (1969), avec un schéma à un moment prédisant les rapports de mélange, tel Reisner et al. (1998) (options un à trois où seuls les rapports de mélanges des hydrométéores considérés sont prédits, alors que les contenus en nombre sont diagnostiqués), Lin et al. (1983), Cotton et al. (1986). Plus récemment, sont apparus des schémas à deux moments prédisant l'évolution du rapport de mélange et du contenu en nombre de chaque type d'hydrométéore (Murakami, 1990 ; Ferrier, 1994 ; Meyers et al., 1997 ; Reisner et al., 1998 ; Cohard et Pinty, 2000). Enfin, très récemment, est apparu un schéma à trois moments permettant de suivre de façon pronostique l'évolution du rapport de mélange, le contenu en nombre et la réflectivité radar. Ce troisième moment permet de pronostiquer un paramètre supplémentaire, contrôlant la forme de la distribution (Milbrandt et Yau, 2005b).

Dans M2C2, nous avons choisi de développer une approche à deux moments permettant de suivre le nombre et le rapport de mélange, mais avec une option à un moment pour la neige et la neige roulée fondée principalement sur les paramétrisations de Rutledge et Hobbs. (1983, 1984), repris par Reisner et al. (1998), et Thompson et al. (2004). L'approche à deux moments conduit à résoudre onze équations pronostiques : deux pour l'eau nuageuse, la pluie, les trois catégories d'hydrométéores glacés et une pour la vapeur d'eau. La prédiction de ces rapports de mélange et concentrations en nombre augmente le degré de liberté associé aux spectres des hydrométéores, et permet une meilleure représentation des processus microphysiques et physico-chimiques (Ferrier, 1994 ; Meyers et al., 1997 ; Richard et al., 1989).

## 1.2. Le schéma de microphysique chaud de M2C2

Le module de microphysique de M2C2 est dérivé d'un modèle de microphysique préexistant (Chaumerliac et al., 1987). Il considère deux catégories d'eau liquide : l'eau nuageuse et l'eau de pluie, qui sont distribuées selon des distributions log-normales définies par :

$$G(D) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma D} \exp\left(-\frac{1}{2\sigma^2} \ln^2\left(\frac{D}{D_0}\right)\right) \quad (26)$$

Où  $D_0$  est le diamètre géométrique moyen de la distribution et  $\sigma$  est l'écart type.

Les processus microphysiques pris en compte par ce modèle sont les processus de nucléation des gouttelettes, de condensation et d'évaporation, de collision/coalescence et de sédimentation. Cette microphysique est fondée sur la paramétrisation de Berry et Reinhardt, (1974a, b, c, d) et de Richard et al., (1984), qui permet de représenter l'eau nuageuse et l'eau de pluie de façon quasi-spectrale, ce qui est un bon compromis entre une représentation réaliste de la composition hétérogène des nuages et les développements de modélisation transport/chimie.

Le schéma microphysique chaud est à deux moments, avec le calcul, à chaque pas de temps de la somme des termes sources et puits pour le nombre de gouttelettes nuageuses et de pluie, ainsi que leur rapports de mélanges respectifs. Le module de microphysique suit donc pour l'eau, 5 variables pronostiques : le rapport de mélange de la vapeur d'eau, de l'eau nuageuse et de l'eau de pluie, et la concentration en nombre des gouttes nuageuses et des gouttes de pluie. La valeur de l'écart type de la distribution des gouttes de pluie et des gouttelettes est fixée, selon la nature de la situation que l'on souhaite représenter (maritime, continentale), alors que le diamètre médian est recalculé à chaque pas de temps à partir du contenu en nombre et du rapport de mélange.

Les processus de collision/coalescence sont divisés en trois processus différents : l'autoconversion qui représente la collision/coalescence des gouttes nuageuses entre elles pour former une goutte de pluie et qui initie la formation des précipitations ; l'accrétion qui représente la collision/coalescence des gouttes nuageuses avec les gouttes de pluie pour former une goutte de pluie plus grosse et qui est le processus de collision/coalescence le plus efficace ; et l'autocollection qui représente la collision/coalescence des gouttes de pluie entre elles pour former une goutte de pluie plus grosse. Les gouttes de pluie sont de plus soumises à la sédimentation.

La nucléation des gouttelettes nuageuses nécessite de connaître précisément la sursaturation, or le temps caractéristique associé aux variations temporelles de la sursaturation est inférieur à un dixième de seconde, bien plus faible que le pas de temps du modèle microphysique qui est de 10 secondes. La prise en compte des processus de nucléation et de condensation/évaporation nécessite donc une approximation de la sursaturation qui est indispensable pour calculer les termes liés à ces processus. La nucléation est prise en compte en calculant la sursaturation maximale sur un pas de temps microphysique. La nucléation des gouttelettes nuageuses est représentée à l'aide de la paramétrisation de Abdul Razzak et al. (1998, 2000), qui permet d'obtenir le nombre de gouttelettes formées à partir de la croissance de distributions d'aérosols représentées par des distributions log-normales. Une telle approche permet de considérer un mélange externe d'aérosols pour lequel chaque spectre log-normal représente un mélange interne de particules c'est à dire qu'on suppose que pour chaque spectre, l'hygroscopicité ne dépend que de la composition chimique des aérosols. Cette paramétrisation permet donc de considérer la composition chimique des particules aérosols. Les aérosols sont représentées dans le modèle comme la somme de  $n$  distributions dimensionnelles log-normales ( $n$  étant limité à 8) qui évoluent au cours du temps par le processus de nucléation des gouttelettes qui représente un puits net d'aérosols. Pour les aérosols, deux variables pronostiques par distribution dimensionnelle sont suivies : le rapport de mélange et la concentration en nombre. Comme pour l'eau nuageuse et l'eau de pluie, l'écart type des distributions des aérosols est fixe et le diamètre médian varie.

La nucléation des gouttelettes, les processus de condensation/évaporation, de collision/coalescence et la sédimentation de la pluie sont pris en compte dans le couplage entre la microphysique et la chimie. En effet, lors de l'activation des aérosols, leur fraction soluble se dissout dans la gouttelette formée et va pouvoir, par la suite, participer à la chimie aqueuse dans la goutte. Pour la condensation/évaporation, elle a un effet de dilution/concentration de la phase aqueuse. L'autoconversion et l'accrétion transfèrent les espèces chimiques de l'eau nuageuse vers la pluie et la sédimentation de la pluie est un puits net d'espèces chimiques pour la parcelle d'air.

### ***1.3. Choix et développement d'une représentation quasi spectrale : la distribution gamma généralisée***

#### **1.3.1. Représentation du spectre des hydrométéores un compromis entre réalisme et temps de calcul**

Comme on vient de le voir, dans M2C2 version microphysique chaude, les hydrométéores étaient repartis en deux types, les gouttelettes, qui ont une vitesse de chute considérée comme négligeable pour la sédimentation (nous verrons plus tard que cette vitesse des gouttelettes n'est pas considérée comme nulle pour les mécanismes de collision/coalescence entre les gouttelettes elles-mêmes ou entre les gouttelettes et les pristines), et au-dessus de 50 microns de diamètre, les gouttes de pluie pour lesquelles on ne peut plus négliger la vitesse de chute, pour la sédimentation. Les gouttelettes de nuage et les gouttes de pluie étaient représentées à l'aide d'une distribution log-normale donnée au paragraphe 1.2 (chapitre II).

L'introduction de la glace dans M2C2 nous a contraint à revoir cette hypothèse pour les gouttes de pluie, car une distribution gamma généralisée est souvent retenue pour représenter les hydrométéores liquides et glacés, celle-ci permettant une plus grande souplesse pour représenter les multiples formes des distributions, par le jeu du paramètre de forme  $v$ . Les notations utilisées ici reprennent la terminologie de Meyers et al. (1997).

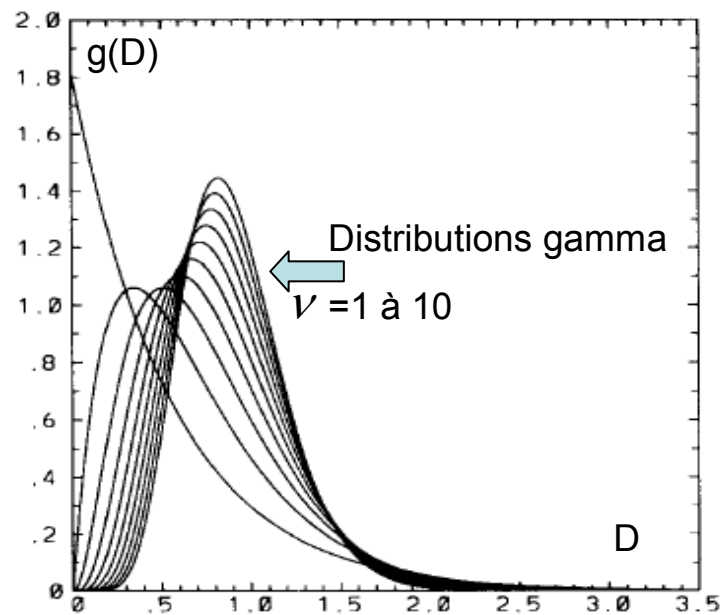
Nous conservons une distribution log-normale pour les gouttelettes nuageuses, car elles sont issues de la nucléation de particules d'aérosols qui sont bien représentées par ce type de distributions (Whitby et al., 1978) et nous retiendrons une distribution gamma généralisée pour la pluie et les hydrométéores glacés.

La distribution gamma généralisée se présente sous la forme :

$$G(D) = \frac{\alpha}{\Gamma(v)} \frac{1}{D_n} \left( \frac{D}{D_n} \right)^{\alpha v - 1} \exp\left(-\left(\frac{D}{D_n}\right)^\alpha\right) \quad (27)$$

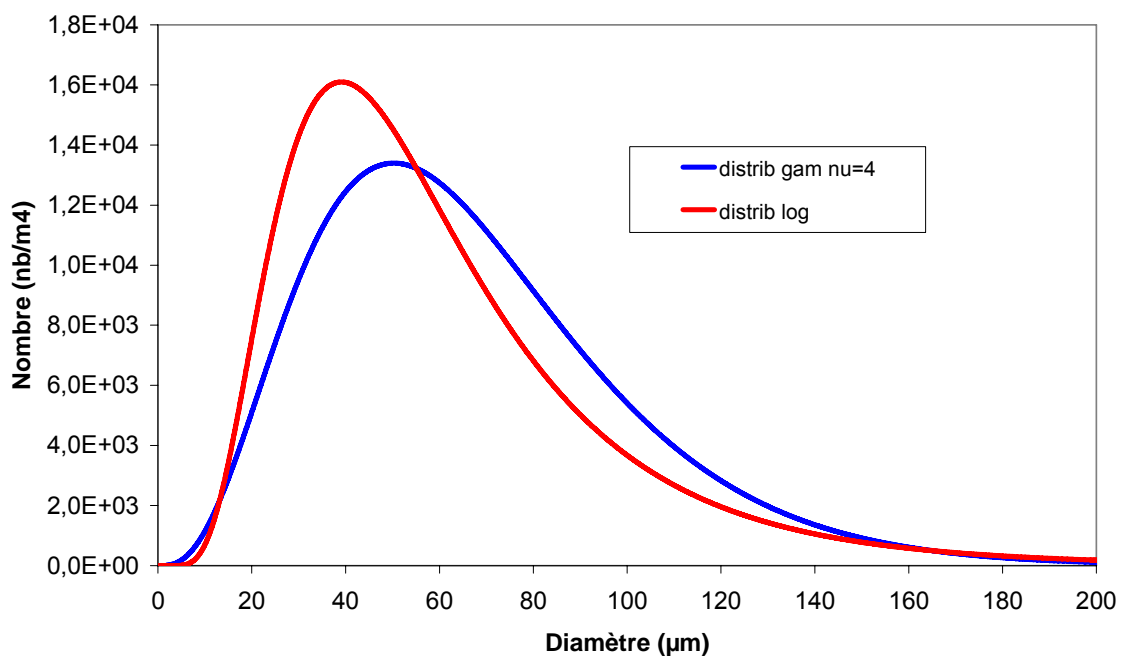
Où  $D_n$  est le diamètre caractéristique de la distribution,  $v$  et  $\alpha$  sont des paramètres qui permettent d'ajuster la forme de la distribution.

La figure (15) présente le faisceau de courbes que nous obtenons en faisant varier le paramètre de forme  $v$ . Notons que lorsque  $v$  vaut un, nous retrouvons la distribution de Marshall-Palmer, qui est de moins en moins utilisée dans les modèles microphysiques quasi-spectraux au profit de la distribution gamma.



**Figure 15 : Distributions gamma pour  $\nu = 1$  à 10.**

Les deux distributions, lognormale et gamma généralisée, sont comparées sur la figure (16) pour une même masse moyenne (diamètre de la masse moyenne  $82,5 \mu\text{m}$ ) et une même concentration en nombre. Le choix du paramètre de forme  $\nu = 4$  pour la distribution gamma de la pluie est discuté en annexe 1.



**Figure 16 : Distributions normalisées gamma ( $\nu=4$ ) et lognormale pour un même diamètre moyen.**

Le choix de la distribution gamma généralisée pour les hydrométéores précipitants est aussi motivé par le fait que Willis (1994) a montré qu'elle permettait une représentation des hydrométéores plus proche de celle observée dans le cas de tempêtes à l'aide d'un spectromètre optique. Le paramètre de forme  $v$  de la distribution est une variable très sensible dans la représentation de la distribution dimensionnelle des hydrométéores (Meyers et al., 1997), son augmentation favorisant les précipitations liquides et glacées. Cependant, les mesures de terrains manquent pour caractériser les valeurs de  $v$  pour chaque type d'hydrométéore et d'événements nuageux. Plus récemment, Milbrandt et Yau, (2005a) font le même constat, notant qu'une valeur constante de  $v$  est généralement utilisée. Souvent, une valeur typique de 2 est utilisée pour tous les hydrométéores (Gohm, 2005). Nous reprendrons cette valeur pour les pristines, la neige, et la neige roulée. Par contre, pour la pluie, les tests de sensibilité que nous avons effectués ont montré qu'une valeur de 4 permettait de mieux représenter la distribution dimensionnelle de la pluie (voir Annexe 1). Le paramètre  $v$  peut être une variable pronostique pour toutes les catégories d'hydrométéores dans le schéma à trois moments présenté par Milbrandt et Yau, (2005a ; 2005b). Le paramètre  $\alpha$  est généralement fixé à un, que ce soit pour la pluie (Ulbrich, 1983), pour les cristaux de glace (Ivanova et al., 2001), et enfin pour la neige, la neige roulée et la grêle (Murakami, 2000 ; Ziegler, 1985). Les équations suivantes prennent en compte cette simplification que nous avons adoptée.

La masse et la vitesse des hydrométéores sont des grandeurs reliées physiquement à leur taille et à leur densité. Les hydrométéores liquides sont généralement considérés comme parfaitement sphériques, ce qui est une très bonne approximation pour les gouttelettes nuageuses et reste raisonnable pour la pluie tant que le diamètre des gouttes ne dépasse pas 1 mm, le volume des hydrométéores liquides est donc en  $(\pi/6)D^3$  et la masse volumique est de 1000 kg par mètre cube, ce qui permet de déterminer une relation masse diamètre pour les hydrométéores liquides. Les hydrométéores glacés se distinguent des précédents par une grande richesse de formes. Locatelli et Hobbs, (1974) ont effectué des mesures de masses et de vitesses afin de déterminer, pour de multiples types d'hydrométéores glacés, les relations simples du type masse diamètre et vitesse diamètre, les plus pertinentes. Plus récemment, Field et al. (2005) ont proposé d'autres valeurs fondées sur des observations radar que les valeurs de Locatelli et Hobbs (1974) ne permettent pas de retrouver. Pour simplifier la résolution des calculs, certains modèles microphysiques considèrent que les hydrométéores glacés sont sphériques, comme Reisner et al. (1998) et Thompson et al. (2004). Cependant de nombreux modélisateurs ont introduit la forme des cristaux dans leur schéma microphysique, dans le modèle méso-NH (Lafore et al., 1998, schéma microphysique [http://mesonh.aero.obs-mip.fr/mesonh/dir\\_doc/book1\\_14dec2001/node19.html#eq3](http://mesonh.aero.obs-mip.fr/mesonh/dir_doc/book1_14dec2001/node19.html#eq3)), le modèle RAMS (Walko et al. 1995), mais aussi dans les modèles MM5 et WRF où Thompson et al. (2006) considèrent que les flocons de neige et les cristaux de glace élémentaires sont de type « plaques » plates, avec un volume en  $D^2$  selon Field et al. (2005).

**Tableau 2 : Valeurs des coefficients a, b, c et d couramment utilisés dans les paramétrisations microphysiques des modèles quasi spectraux et valeurs utilisées dans M2C2.**

Hydrométéore	A	b	Référence	c	d	Référence
Gouttelettes	524	3	Tout schéma (sphère) (M2C2)			Berry et Pranger. (1974) (M2C2)
Pluie	524	3	Tout schéma (sphère) (M2C2)	842	0,8	Locatelli et Hobbs. (1974) (M2C2)
Glace nuageuse	262	3	Reisner et al. (1998) (M2C2)	700	1	Ikawa et Saito. (1991) (M2C2)  Heymsfield (1972)  Thompson et al. (2005)
	0,82	2,5	Starr et Cox. (1985)	800	1	
	0,069	2	Field et al. (2005)	2247	1	
Neige	52,4	3	Reisner et al. (1998) (M2C2)	11,72	0,41	Locatelli et Hobbs. (1974) (M2C2)  Locatelli et Hobbs. (1974) (M2C2)  Thompson et al. (2006)
	0,02	1,9	Locatelli et Hobbs. (1974) (M2C2)	5,1	0,27	
	0,069	2	Field et al. (2005)	40	0,55	
Neige roulée	209,6	3	Reisner et al. (1998) (M2C2)	19,3	0,37	Locatelli et Hobbs. (1974) (M2C2)  Locatelli et Hobbs. (1974) (M2C2)
	19,6	2,8	Locatelli et Hobbs. (1974) (M2C2)	124	0,66	

Les relations masse diamètre et vitesse diamètre que nous avons utilisées sont données par :

$$m(D) = aD^b \quad (28)$$

Où a et b sont des constantes permettant de prendre en compte la densité et la forme des différentes catégories d'hydrométéores, m(D) est en kg.

$$V(D) = cD^d (\rho_0 / \rho_a)^{0.4} \quad (29)$$

Où c et d sont les constantes de vitesse de chute établies à partir de mesures de la vitesse de chute des différents types d'hydrométéores en fonction de leur diamètre et  $(\rho_0/\rho_a)^{0.4}$  est le facteur de correction de Foote et DuToit, (1969) qui permet de prendre en compte la densité de l'air dans la vitesse de chute,  $\rho_0$  étant la densité de l'air au niveau de la mer, et  $\rho_a$  la densité de l'air à l'altitude considérée. Ainsi, moins l'air est dense, plus la vitesse de chute est élevée, considérant que l'accélération de la pesanteur est constante. V(D) est en m/s.

Les valeurs des constantes a, b, c et d utilisées par les différents schémas microphysiques existants ainsi que celles que nous utilisons dans M2C2 sont données dans le tableau 2. Pour les hydrométéores glacés, il existe deux possibilités dans M2C2, soit ils sont considérés comme sphériques, soit leur forme est considérée comme plus complexe, avec de nouvelles relations masse diamètre et vitesse diamètre, la neige est considérée comme étant un assemblage de dendrites

fortement givrées, et la neige roulée suit les relations ‘lump graupel’ données par Locatelli et Hobbs, (1974). Dans ce cas, on parlera de simulations ‘cristaux complexes’ dans M2C2.

### 1.3.2. Grandeurs caractéristiques associées à la distribution gamma généralisée

#### ➤ Le moment d'ordre p

A partir de la distribution gamma généralisée, on définit les moments d'ordre p,  $M_j(p)$ , qui représentent l'intégrale sur tout le domaine positif D de  $D^p$  multiplié par la distribution gamma de l'hydrométéore j, comme présenté par l'équation (30) ci-dessous :

$$M_j(p) = \int_0^{\infty} D^p G_j(D) dD \quad \text{Avec} \quad M_j(p) = \frac{\Gamma(\nu_j + p)}{\Gamma(\nu_j)} D_{nj}^p \quad (30)$$

Où  $\Gamma$  est la fonction gamma telle que  $\Gamma(X+1) = X\Gamma(X)$ ,  $\Gamma(X) = (X-1)!$  et  $\Gamma(1)=1$ . Cette fonction est très performante et économique en temps de calcul dans le traitement des équations microphysiques qui font appel à de multiples intégrations sur la taille des hydrométéores (Tripoli et al., 1988), mais pour pouvoir l'utiliser nous devons connaître la valeur de  $D_n$ , le diamètre caractéristique de la distribution. L'équation (31) relie le rapport de mélange, la concentration en nombre, et le diamètre caractéristique  $D_{nj}$  de l'hydrométéore j par le biais du moment  $M(b_j)$  :

$$\rho_a Q_j = \int_0^{\infty} m_j(D) N_j G_j(D) dD = a_j N_j M_j(b_j) = a_j N_j \frac{\Gamma(\nu_j + b_j)}{\Gamma(\nu_j)} D_{nj}^{b_j} \quad (31)$$

Or nous connaissons le rapport de mélange et la concentration en nombre de chaque catégorie d'hydrométéore à chaque pas de temps par la somme des termes sources et puits, ce qui nous permet de recalculer, à chaque pas de temps, le diamètre caractéristique  $D_{nj}$  de la distribution :

$$D_{nj}^{b_j} = \frac{\rho_a Q_j}{a_j N_j} \frac{\Gamma(\nu_j)}{\Gamma(\nu_j + b_j)} \quad \text{d'où} \quad D_{nj} = \left( \frac{\rho_a Q_j}{a_j N_j} \frac{\Gamma(\nu_j)}{\Gamma(\nu_j + b_j)} \right)^{\frac{1}{b_j}} \quad (32)$$

Une fois le diamètre caractéristique de la distribution connu, nous pouvons calculer rapidement et d'une façon très économique en ressources informatique de nombreuses grandeurs.

#### ➤ Le diamètre moyen (figure (17)) des hydrométéores (à ne pas confondre avec le

diamètre de la masse moyenne) tel que :  $D_{moyj} = \frac{\int_0^{\infty} N_j D G_j(D) dD}{N_j}$  Où  $N_j$ , le nombre

total d'hydrométéore de catégorie j, est indépendant du diamètre, d'où :

$$D_{moyj} = M_j(1) \quad (33)$$

#### ➤ Le diamètre modal ( $D_{modej}$ ) tel que $d(G(D))/dD=0$ , soit la valeur du diamètre pour laquelle la concentration en nombre est la plus élevée (figure (17)) :

$$D_{modej} = (\nu_j - 1) D_{nj} \quad (34)$$

#### ➤ La variance (le carré de l'écart type) est aussi défini à partir de $D_{nj}$ tels que :

$$\sigma_j^2 = \int_0^{\infty} (D - D_{moyj})^2 G_j(D) dD = D_{nj}^2 \frac{\Gamma(\nu_j + 2)}{\Gamma(\nu_j)} - D_{nj}^2 \left[ \frac{\Gamma(\nu_j + 1)}{\Gamma(\nu_j)} \right]^2 \quad (35)$$

#### ➤ La masse moyenne est telle que $N_j \bar{m}_j = \int_0^{\infty} N_j m_j(D) G_j(D) dD$ , d'où :



$$\overline{m_j} = \int_0^{\infty} m_j(D) G_j(D) dD = a_j M_j(b_j) \quad (36)$$

- Le diamètre de la masse moyenne (figure (17)) d'un hydrométéore j :  $D_{mj}$  est défini à partir de la masse moyenne tel que  $\overline{m_j} = a_j D_{mj}^{b_j}$  et de plus, on a vu précédemment que  $\overline{m_j} = a_j M_j(b_j)$  d'où :

$$D_{mj} = \left( M_j(b_j) \right)^{\frac{1}{b_j}} \quad (37)$$

- Le diamètre de la masse prédominante  $D_{pj}$  d'un hydrométéore j, tel que :

$$m_{pj} = \frac{\int_0^{\infty} m_j^2(D) G_j(D) dD}{\int_0^{\infty} m_j(D) G_j(D) dD} = \frac{a_j^2 M_j(2b_j)}{a_j M_j(b_j)} = a_j D_{pj}^{b_j} \quad \text{D'où} \quad D_{pj} = \left( \frac{M_j(2b_j)}{M_j(b_j)} \right)^{\frac{1}{b_j}} \quad (38)$$

Nous utilisons également, pour les paramétrisations microphysiques, la vitesse de chute moyennée sur le nombre et sur la masse.

- Vitesse de chute moyennée en nombre :  $V_{nj} N_j = \int_0^{\infty} N_j V_j(D) G_j(D) dD$  d'où :

$$V_{nj} = \left( \frac{\rho_0}{\rho_a} \right)^{0.4} c_j M_j(d_j) = \left( \frac{\rho_0}{\rho_a} \right)^{0.4} c_j \left( \frac{\Gamma(\nu_j + d_j) D_{nj}^{d_j}}{\Gamma(\nu_j)} \right) \quad (39)$$

- Vitesse de chute moyennée en masse :  $V_{mj} \overline{m_j} = \int_0^{\infty} V_j(D) m_j(D) G_j(D) dD$  d'où :

$$V_{mj} = \left( \frac{\rho_0}{\rho_a} \right)^{0.4} c_j \frac{M_j(b_j + d_j)}{M_j(b_j)} = \frac{\left( \frac{\rho_0}{\rho_a} \right)^{0.4} c_j \Gamma(1 + (d_j + b_j)) D_{mj}^{d_j}}{\Gamma(1 + b_j)} \quad (40)$$

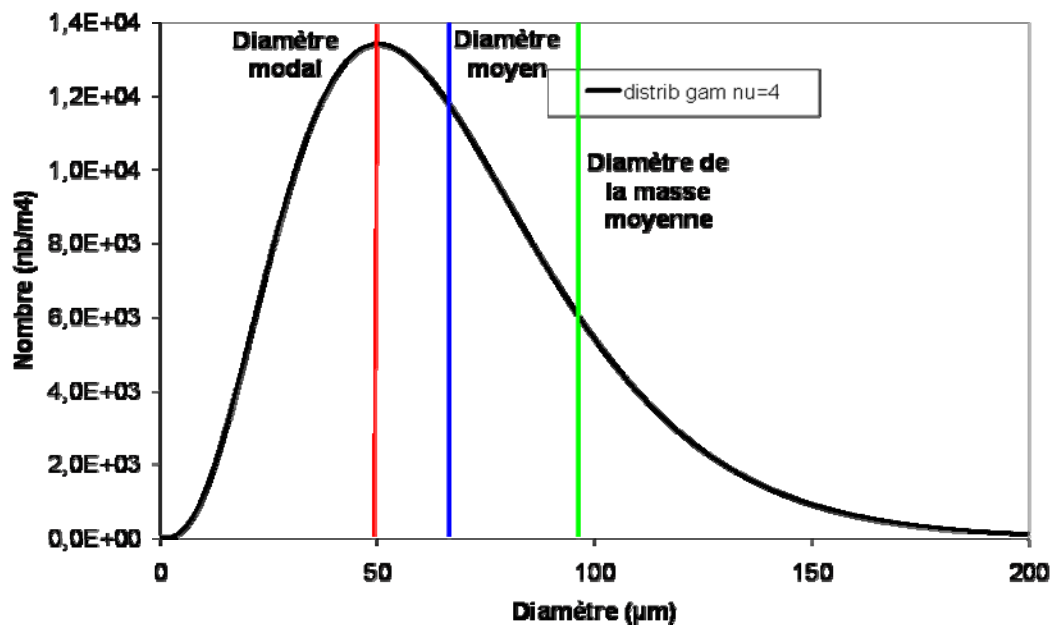


Figure 17 : Distribution gamma ( $\nu=4$ ), et quelques grandeurs associées

### 1.3.3. En résumé, le schéma microphysique en phase mixte:

- Le schéma comprend deux équations pronostiques pour l'eau nuageuse, la pluie, la glace primaire, la neige et les cristaux givrés pour respectivement leur concentration en nombre ( $N_c$ ,  $N_r$ ,  $N_i$ ,  $N_s$ ,  $N_g$ ) et leur rapport de mélange ( $Q_c$ ,  $Q_r$ ,  $Q_i$ ,  $Q_s$ ,  $Q_g$ ) et une équation pronostique pour le rapport de mélange de la vapeur d'eau ( $Q_v$ ).
- Les unités utilisées sont le système MKS.
- Les relations masse diamètre utilisent une équation du type :

$$m_j(D) = a_j D^{b_j}$$

- La vitesse de chute des hydrométéores s'exprime comme suit :

$$V_j(D) = c_j D^{d_j} (\rho_0 / \rho_a)^{0.4}$$

Les distributions dimensionnelles des hydrométéores sont représentées à l'aide de fonctions gamma généralisées pour lesquelles chaque catégorie d'hydrométéores est caractérisée par un jeu de paramètres définis par rapport à leur nature (pluie, glace élémentaire, neige et neige roulée), à l'exception des gouttelettes nuageuses qui sont représentées par une distribution lognormale.

### 1.4. Développements et paramétrisations des processus microphysiques mixtes dans M2C2

#### 1.4.1. Un schéma à un ou deux moments pour les hydrométéores glacés précipitants

Deux types de schémas sont disponibles dans M2C2. Un premier partiellement à deux moments, où seule l'eau nuageuse, la pluie et la glace primaire sont suivies de façon pronostique en rapport de mélange et en concentration en nombre, alors que la neige et la neige roulée sont à un moment, avec une évolution pronostiquée du rapport de mélange et diagnostiquée de la concentration en nombre. Le second schéma est à deux moments pour tous les types d'hydrométéores, avec une évolution pronostiquée des rapports de mélanges et des concentrations en nombre de chaque type d'hydrométéores.

Le schéma à un moment pour la neige et la neige roulée nous oblige à diagnostiquer l'évolution en nombre à partir du rapport de mélange. Pour cela, une approche a été couramment utilisée par les modélisateurs en microphysique à l'époque où les distributions étaient représentées par la courbe de Marshall-Palmer donnée par :

$$N_j(D) = \frac{N_j}{D_{nj}} \exp\left(-\frac{D}{D_{nj}}\right) \quad (41)$$

Cette méthode consiste à calculer la concentration en nombre à partir du paramètre d'interception  $N_{0j}$  :

$$N_{0j} = N_j / D_{nj} \text{ en nb/m}^4 \quad (42)$$

Ce paramètre représente la valeur de la fonction de Marshall-Palmer pour  $D=0$ . Le paramètre d'interception est soit fixe (déterminé en fonction de mesures faites sur le terrain), soit fonction d'une autre variable, comme le rapport de mélange ou encore la température. Le diamètre caractéristique  $D_n$  est alors calculé par la formule (32) (avec  $\alpha=v=1$ ) en exprimant  $N_j$  en fonction de  $N_{0j}$  avec (42). On résout ainsi un système à deux inconnues ( $N_j$  et  $D_n$ ) avec les équations (42) et (32), cette dernière est aussi fonction du rapport de mélange, grandeur pronostiquée. Finalement, la concentration en nombre est diagnostiquée.

La même méthode de calcul peut être appliquée pour la distribution gamma généralisée, même si  $N_{0j}$ , le paramètre d'interception, perd tout sens physique interprétable (Thompson et al., 2006). Par analogie avec la distribution de Marshall-Palmer, on obtient :

$$N_j(D) = N_j G_j(D) = \frac{N_j}{\Gamma(v_j) D_{nj}^{v_j}} D^{v_j-1} \exp\left(-\frac{D}{D_{nj}}\right) \text{ Avec : } N_{0j} = \frac{N_j}{\Gamma(v_j) D_{nj}^{v_j}} \quad (43)$$

Si on introduit  $N_{0j}$  dans (32) on obtient  $D_{nj}$  en fonction de  $Q_j$  et de  $N_{0j}$  tel que

$$D_{nj} = \left( \frac{\rho_a Q_j}{a_j N_{0j}} \frac{1}{\Gamma(v_j + b_j)} \right)^{\frac{1}{b_j + v_j}}, \text{ enfin, avec } D_{nj} \text{ et } N_{0j} \text{ déterminés, on obtient } N_j \text{ avec (43), de façon diagnostique.}$$

Pour la neige, deux possibilités ont été introduites dans M2C2 : une valeur constante du paramètre d'interception ( $N_{0s}=2.10^7$ ) (nb/m<sup>4</sup>) et une valeur en fonction de la température (Thompson et al., 2004). Cette dernière est estimée à partir des travaux de Houze et al. (1979) qui, en étudiant des spectres mesurés en avion dans des nuages frontaux, ont montré une relation entre la température et le diamètre moyen des flocons de neige (croissant avec la température), avec une diminution du paramètre d'interception et de l'inverse du diamètre caractéristique associé à l'augmentation de la température. La paramétrisation est de la forme :

$$N_{0s} = \min\{2.10^8, 2.10^6 \exp(-0.12 \cdot \min[-0.001, T-T_0])\} \quad (44)$$

Pour la neige roulée, ils existent aussi deux possibilités dans M2C2, soit une valeur constante pour  $N_{0g}$ , telle que  $N_{0g}=4.10^6$  (nb/m<sup>4</sup>) (Rutledge et Hobbs., 1984), soit une valeur fonction de la masse volumique (Thompson et al., 2004) telle que :

$$N_{og} = 2,38 \left( \frac{\pi \rho_g}{\rho_a} \right)^{0,92} \quad (\text{nb/m}^4) \quad (45)$$

Cependant, un schéma à deux moments est préférable à un schéma à un moment, en effet, dans un schéma à un moment, le contenu en nombre et le rapport de mélange sont proportionnellement reliés, ce qui n'est pas réaliste, ces deux grandeurs pouvant varier indépendamment l'une de l'autre. Par exemple, la croissance par dépôt de vapeur des flocons de neige change son rapport de mélange mais pas le nombre de flocons ; au contraire, l'autocollection d'une catégorie modifie le nombre, mais pas le rapport de mélange, ainsi la nature et l'histoire différente de chaque nuage est représentée de façon plus appropriée par un schéma à deux moments que par un schéma à un moment (Milbrandt et Yau, 2005a). Pour ces raisons, M2C2 propose aussi un schéma à deux moments. Ce schéma fait la somme des termes sources et puits pour chaque type d'hydrométéores et à chaque pas de temps pour suivre leur évolution en rapport de mélange et en nombre. Il nécessite par rapport à un schéma à un moment de nombreuses équations supplémentaires qui ont un coût en terme de temps de calcul empêchant l'utilisation d'un tel schéma pour les modèles de prévisions en temps réel (Thompson et al., 2004). En comparant le résultat de simulations et de mesures de terrain, Reisner et al. (1998), ont montré qu'un schéma à deux moments permet d'obtenir des quantités de neige plus réalistes qu'un schéma à un moment, montrant l'utilité d'introduire ce deuxième moment et toutes les paramétrisations microphysiques associées pour améliorer le réalisme des modèles microphysiques.

#### 1.4.2. Généralités sur les paramétrisations microphysiques des nuages mixtes dans M2C2.

Les paramétrisations microphysiques des nuages mixtes présentés dans les paragraphes suivants permettent de suivre l'évolution en nombre et en rapport de mélange de chaque catégorie d'hydrométéores considérés. Ces évolutions sont calculées à chaque pas de temps en faisant la somme des termes sources et des termes puits pour chaque type d'hydrométéore. Les évolutions en nombre présentées ci-dessous seront toujours en nombre par m<sup>3</sup> et par seconde, alors que les évolutions en rapport de mélange seront toujours en kg par kg d'air et par seconde.

#### 1.4.3. Formation de la glace nuageuse élémentaire, appelée 'pristine'

##### 1.4.3.1. Nucléation de la glace nuageuse

Comme on l'a vu au chapitre I en 1.2.1, la littérature propose trois paramétrisations de la nucléation hétérogène, cependant, seule la paramétrisation développée par Cooper. (1986) repose sur des mesures de concentration en cristaux de glace. C'est la raison pour laquelle nous avons choisi d'utiliser cette paramétrisation dans M2C2 qui est donnée par :

$$XNUCICE = A \exp(B(T_0 - T)) \quad (46)$$

Où  $T_0 = 273.15 \text{ K}$

$A = 0.005$  et  $B = 0.304$  pour  $T > 233 \text{ K}$

Cette paramétrisation permet de créer un nombre minimum de cristaux de glace nuageuse dont la masse est  $XMI0$  tel que  $XMI0 = 1 \cdot 10^{-12} \text{ kg}$  selon Ikawa et Saïto (1991) soit la masse minimale du cristal de glace primaire. Si le nombre de cristaux de glace ( $N_i$ ) est déjà supérieur à  $XNUCICE$ , on ne prend pas en compte la nucléation hétérogène, si  $XNUCICE$  est supérieur à  $N_i$ , on ne prend en compte que la différence ( $XNUCICE - N_i$ ) pour la nucléation hétérogène, en nombre et en contenu. En clair, la nucléation hétérogène de Cooper. (1986) impose une concentration minimale en cristaux de glace en fonction de la température, si l'air est sursaturé à

plus de 5% au dessus de la glace. C'est un terme source pour la glace nuageuse et puits pour la vapeur d'eau.

$$\left(\frac{\partial Qi}{\partial t}\right)_{nuc\_ice} = MAX\left[0, XMI0 \frac{(XNUCICE - Ni)}{\partial t \rho_a}\right] = -\left(\frac{\partial Qv}{\partial t}\right)_{nuc\_ice} = XNUCQI \quad (47)$$

$$\left(\frac{\partial Ni}{\partial t}\right)_{nuc\_ice} = \rho_a \frac{XNUCQI}{XMI0} = XNUCNI \quad (48)$$

#### **1.4.3.2. Congélation hétérogène de l'eau nuageuse**

La congélation hétérogène est un mécanisme faisant intervenir la probabilité qu'a une gouttelette d'eau surfondue de congeler sans l'intervention d'un germe extérieur, de sorte qu'elle forme, de manière aléatoire, un germe de glace aboutissant à la congélation de la gouttelette d'eau surfondue (Bigg. 1953). Comme nous l'avons vu au chapitre I en 1.2.2, cette probabilité est d'autant plus élevée que les gouttelettes sont grandes et que la température est basse. La paramétrisation de la congélation hétérogène des gouttelettes nuageuses donnant de la glace nuageuse dans M2C2, et utilisée dans le modèle MM5 (Reisner et al., 1998) s'exprime de la façon suivante :

$$\left(\frac{\partial Qi}{\partial t}\right)_{frez\_cloud} = B * EXP[A(T_0 - T) - 1] \frac{\rho_a Qc^2}{\rho_w Nc} = -\left(\frac{\partial Qc}{\partial t}\right)_{frez\_cloud} = FREZQI \quad (49)$$

Où  $A = 0.66 \text{ K}^{-1}$  et  $B = 100 \text{ m}^{-3} \text{ s}^{-1}$ . La température doit être inférieure à  $-5^\circ\text{C}$  pour que ce mécanisme de congélation soit pris en compte.

Pour l'évolution en nombre des cristaux de glace par congélation hétérogène des gouttelettes nuageuse, on considère que les cristaux de glace formés ont la masse du plus petit cristal de glace possible  $XMI0$  :

$$\left(\frac{\partial Ni}{\partial t}\right)_{frez\_cloud} = \rho_a \frac{FREZQI}{XMI0} = -\left(\frac{\partial Nc}{\partial t}\right)_{frez\_cloud} = FREZNI \quad (50)$$

Où  $\rho_a$  est la densité de l'air à l'altitude considérée.

### **1.4.4. Croissance des hydrométéores par dépôt de vapeur et évaporation**

#### **1.4.4.1. Formules générales**

La paramétrisation de la croissance par dépôt de vapeur des d'hydrométéores dans M2C2 utilise la formulation de Pruppacher et Klett, (1978), décrite et détaillée au chapitre I en 1.2.3. :

$$\left(\frac{\partial Qj}{\partial t}\right)_{dep\_vap\_j} = \frac{(S_p - 1)}{A_p \rho_a} Nj \int_0^\infty C_j \overline{f_j} G_j(D) dD \quad (51)$$

Après intégration sur les diamètres, la variation du rapport de mélange par dépôt de vapeur/évaporation s'écrit pour chaque type d'hydrométéores glacés :

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial Qi}{\partial t}\right)_{dep\_vap\_ice} &= \frac{4(S_i - 1)Ni}{A_i \rho_a} \left[ \overline{f_{i0}} M_i(1) + \overline{f_{i2}} \left(\frac{\rho_a}{\eta}\right) Scv^{\frac{2}{3}} c_i (\rho_0 / \rho_a)^{0.4} M_i(2 + d_i) \right] \\ &= -\left(\frac{\partial Qv}{\partial t}\right)_{dep\_vap\_ice} = DEPVQI \end{aligned} \quad (52)$$

$$\begin{aligned} \left( \frac{\partial Q_s}{\partial t} \right)_{dep\_vap\_snow} &= \frac{4(S_i - 1)Ns}{A_i \rho_a} \left[ \overline{f_{s0}} M_s (1) + \overline{f_{s1}} \left( \frac{\rho_a}{\eta} \right)^{\frac{1}{2}} Scv^{\frac{1}{3}} \left( c_s (\rho_0 / \rho_a)^{0,4} \right)^{\frac{1}{2}} M_s \left( \frac{3 + d_s}{2} \right) \right] \\ &= - \left( \frac{\partial Q_v}{\partial t} \right)_{dep\_vap\_snow} = DEPQSNOW \end{aligned} \quad (53)$$

$$\begin{aligned} \left( \frac{\partial Q_g}{\partial t} \right)_{dep\_vap\_graup} &= \frac{2\pi(S_i - 1)Ng}{A_i \rho_a} \left[ \overline{f_{g0}} M_g (1) + \overline{f_{g1}} \left( \frac{\rho_a}{\eta} \right)^{\frac{1}{2}} Scv^{\frac{1}{3}} \left( c_g (\rho_0 / \rho_a)^{0,4} \right)^{\frac{1}{2}} M_g \left( \frac{3 + d_g}{2} \right) \right] \\ &= - \left( \frac{\partial Q_v}{\partial t} \right)_{depo\_vap\_graup} = DEPQGRAUP \end{aligned} \quad (54)$$

Les valeurs des facteurs de ventilations utilisées dans les équations ci-dessus sont reportées dans le tableau 3.

**Tableau 3 : Valeurs des facteurs de ventilation et des capacitances utilisées dans M2C2.**

Paramètres	Glace élémentaire	Neige	Neige roulée
$\overline{f_0}$	1	0,65	0,78
$\overline{f_1}$	0	0,44	0,31
$\overline{f_2}$	0,14	0	0
$C_1$	4	4	$2\pi$

Alors que la condensation ne joue pas sur le nombre, lors des phases d'évaporation, la disparition d'un certain nombre d'hydrométéores en même temps qu'une partie de leur rapport de mélange doit être prise en compte. La paramétrisation utilisée dans M2C2 pour les hydrométéores glacés suit celle de Ferrier et al. (1994) qui considèrent que la perte en nombre est proportionnelle à la perte en rapport de mélange pour la glace, la neige et la neige roulée, paramétrisation utilisée par Reisner et al. (1998) et par Milbrandt et Yau, (2005). Les termes puits s'expriment de la façon suivante :

$$\left( \frac{\partial N_i}{\partial t} \right)_{\acute{e}vap\_ice} = N_i \frac{\left( \frac{\partial Q_i}{\partial t} \right)_{dep\_vap\_ice}}{Q_i} = -EVANICE \quad \text{pour} \quad \left( \frac{\partial Q_i}{\partial t} \right)_{dep\_vap\_ice} < 0 \quad (55)$$

$$\left( \frac{\partial N_s}{\partial t} \right)_{\acute{e}vap\_snow} = N_s \frac{\left( \frac{\partial Q_s}{\partial t} \right)_{dep\_vap\_snow}}{Q_s} = -EVANSNOW \quad \text{pour} \quad \left( \frac{\partial Q_s}{\partial t} \right)_{dep\_vap\_snow} < 0 \quad (56)$$

$$\left( \frac{\partial N_g}{\partial t} \right)_{\acute{e}vap\_graup} = N_g \frac{\left( \frac{\partial Q_g}{\partial t} \right)_{dep\_vap\_graup}}{Q_g} = -EVANGRAUP \quad \text{pour} \quad \left( \frac{\partial Q_g}{\partial t} \right)_{dep\_vap\_graup} < 0 \quad (57)$$

#### **1.4.4.2. Evaporation des Hydrométéores glacés en cours de fonte**

De plus il faut traiter le cas des hydrométéores glacés qui s'évaporent à des températures positives. De fait ces hydrométéores sont recouverts d'un film liquide et leur évaporation se fait de la phase liquide à la phase vapeur et non de la phase glacée à la phase vapeur. La phase « p » des

termes A et S de l'équation (51) représente donc la phase liquide alors que la variation porte sur un hydrométéore glacé (Rutledge et Hobbs, 1984). La glace nuageuse n'est pas concernée par cet aspect dans le modèle car on considère que dès que la température devient positive, l'intégralité des petits cristaux fond. Nous obtenons ainsi un terme source pour la vapeur d'eau et puits pour la neige et la neige roulée :

$$\left(\frac{\partial Q_v}{\partial t}\right)_{\text{évap\_melt\_snow}} = \frac{4(S_l - 1)N_s}{A_l \rho_a} \left[ \overline{f_{s0}} M_s(1) + \overline{f_{s1}} \left(\frac{\rho_a}{\eta}\right)^{\frac{1}{2}} Scv^{\frac{1}{3}} (c_s (\rho_0 / \rho_a)^{0.4})^{\frac{1}{2}} M_s \left(\frac{3 + d_s}{2}\right) \right]$$

$$= -\left(\frac{\partial Q_s}{\partial t}\right)_{\text{évap\_melt\_snow}} = EVAPMQS \quad (58)$$

$$\left(\frac{\partial Q_v}{\partial t}\right)_{\text{évap\_melt\_graup}} = \frac{2\pi(S_l - 1)Ng}{A_l \rho_a} \left[ \overline{f_{g0}} M_g(1) + \overline{f_{g1}} \left(\frac{\rho_a}{\eta}\right)^{\frac{1}{2}} Scv^{\frac{1}{3}} (c_g (\rho_0 / \rho_a)^{0.4})^{\frac{1}{2}} M_g \left(\frac{3 + d_g}{2}\right) \right]$$

$$= -\left(\frac{\partial Q_g}{\partial t}\right)_{\text{évap\_melt\_graup}} = EVAPMQG \quad (59)$$

#### 1.4.5. Croissance des hydrométéores par collision/coalescence

##### 1.4.5.1. Equations générales, description des termes.

La croissance des hydrométéores par collision/coalescence est représentée à l'aide de l'équation de collection continue présentée en 1.2.4, Chapitre 1. L'équation générale de l'évolution en rapport de mélange s'écrit :

$$\left(\frac{\partial Q_j}{\partial t}\right) = \int_0^\infty \int_0^\infty \frac{\pi}{4} [D_k + D_j]^2 |V(D_k) - V(D_j)| E_{jk} N_k G_k(D_k) \frac{m(D_k)}{\rho_a} dD_k N_j G_j(D) dD_j \quad (60)$$

Où l'hydrométéore j croît au profit de l'hydrométéore k (par exemple dans le cas du givrage de gouttelettes nuageuses sur la neige, j est la neige, k est l'eau nuageuse).

L'équation de collection continue de l'évolution en nombre s'écrit :

$$\left(\frac{\partial N_k}{\partial t}\right) = -\int_0^\infty \int_0^\infty \frac{\pi}{4} [D_j + D_k]^2 |V_j(D_j) - V_k(D_k)| E_{kj} N_j G_j(D_j) dD_j N_k G_k(D_k) dD_k \quad (61)$$

L'efficacité de collection est une grandeur souvent mal connue. Les valeurs utilisées ici proviennent de la littérature (tableau 4, ci dessous), et sont le plus souvent simplifiées avec  $E_{jk} = \text{constante}$ .

**Tableau 4 : Efficacités de collection entre différents types d'hydrométéores dans M2C2.**

Efficacité de collection $E_{jk}$	Gouttelettes	Gouttes de pluie	Pristines	Neige	Neige roulée
Gouttelettes	1				
Gouttes de pluie	1 (R1)	1			
Pristines	Variable (§)	1 (R2)	0,1 (I)		
Neige	1 (R1)	1 (I)	1 (R1)	0,1 (R)	
Neige roulée	1 (R2)	1 (R2)	0 (R)	0 (R)	0 (R)

R1: Rutledge et Hobbs, 1983

R2: Rutledge et Hobbs, 1984

I: Ikawa et Saito, 1991

§ Fletcher, 1962; Mizuno et Matuo, 1980; Ikawa et Saito, 1991 p 80

R : Reisner et al, 1998

L'intégrale double sur une valeur absolue empêche une résolution analytique de l'équation, mais des simplifications sont possibles dans certains cas. Ainsi le diamètre et la vitesse des gouttelettes et des cristaux de glace peuvent être considérés comme négligeables devant ceux des hydrométéores précipitants (pluie, neige, neige roulée). Les paragraphes suivants décrivent les simplifications utilisées dans M2C2 permettant de résoudre les intégrales de façon analytique, économique en temps de calcul.

Certaines interactions entre les hydrométéores ont un coefficient d'efficacité de collection très faible, comme  $E_{sg}$  la collection de la neige roulée par la neige (Ferrier et al., 1995) et  $E_{gg}$  la collection de la neige roulée sur elle-même (Milbrandt et Yau, 2005), et ne sont donc pas pris en compte dans la microphysique de M2C2.

#### **1.4.5.2. Collision/coalescence entre petits et gros hydrométéores**

L'équation de collection continue en rapport de mélange peut se simplifier si on considère que les diamètres et les vitesses des hydrométéores non précipitants (eau nuageuse, glace nuageuse) sont très inférieurs aux diamètres et vitesses des hydrométéores précipitants (Rutledge et Hobbs, 1983 ; 1984). Avec ces simplifications, et si on considère la collection en masse de l'hydrométéore non précipitant 'k' sur l'hydrométéore précipitant 'j', l'équation de collection continue se simplifie en :

$$\left( \frac{\partial Q_j}{\partial t} \right)_{coll\_j\_k} = \int_0^\infty Nk \frac{m_j(D_k)}{\rho_a} G_k(D_k) dD_k \int_0^\infty \frac{\pi}{4} [D_j]^2 V_j(D_j) E_{jk} N_j G_j(D_j) dD_j = - \left( \frac{\partial Qk}{\partial t} \right)_{coll\_j\_k} \quad (62)$$

Si on considère la collection en masse de l'hydrométéore précipitant 'j' sur l'hydrométéore non précipitant 'k' on obtient :

$$\left( \frac{\partial Q_j}{\partial t} \right)_{coll\_j\_k} = \int_0^\infty \frac{Nk}{\rho_a} G_k(D_k) dD_k \int_0^\infty \frac{\pi}{4} [D_j]^2 V_j(D_j) E_{jk} m_j(D_j) N_j G_j(D_j) dD_j = - \left( \frac{\partial Qk}{\partial t} \right)_{coll\_j\_k} \quad (63)$$

L'intégration analytique ne pose plus de problèmes. Ainsi sont traités :

- Le givrage des gouttelettes nuageuses sur la neige (puits pour l'eau nuageuse, source pour la neige et la neige roulée décrite par la suite en 1.4.6.2) :

$$\left( \frac{\partial Qc}{\partial t} \right)_{coll\_cloud\_snow} = - \frac{\pi}{4} Qc E_{cs} c_s N_s \left( \frac{\rho_0}{\rho_a} \right)^{0,4} M_s (2 + d_s) = -COLLQCS \quad (64)$$

- Le givrage des gouttelettes nuageuses sur la neige roulée (puits pour l'eau nuageuse, source pour la neige roulée) :

$$\left( \frac{\partial Qg}{\partial t} \right)_{coll\_cloud\_graup} = \frac{\pi}{4} Qc E_{cg} c_g N_g \left( \frac{\rho_0}{\rho_a} \right)^{0,4} M_g (2 + d_g) = - \left( \frac{\partial Qc}{\partial t} \right)_{coll\_cloud\_graup} = COLLQCG \quad (65)$$

- Le givrage de la pluie sur la glace nuageuse (puits pour l'eau de pluie, source pour la neige et la neige roulée décrite par la suite en 1.4.6.2) :

$$\left( \frac{\partial Qr}{\partial t} \right)_{coll\_rain\_ice} = - \frac{\pi}{4} \frac{Ni}{\rho_a} E_{ri} c_r a_r N_r \left( \frac{\rho_0}{\rho_a} \right)^{0,4} M_r (2 + b_r + d_r) = -COLLQRIG \quad (66)$$

- La collection de la glace nuageuse par la neige (puits pour la glace nuageuse, source pour la neige) :

$$\left( \frac{\partial Qs}{\partial t} \right)_{coll\_ice\_snow} = \frac{\pi}{4} Qi E_{is} c_s N_s \left( \frac{\rho_0}{\rho_a} \right)^{0,4} M_s (2 + d_s) = - \left( \frac{\partial Qi}{\partial t} \right)_{coll\_ice\_snow} = COLLQIS \quad (67)$$



- La collection de la glace nuageuse par la pluie (puits pour la glace nuageuse, source pour la neige et la neige roulée décrite par la suite en 1.4.6.2) :

$$\left(\frac{\partial Qi}{\partial t}\right)_{coll\_ice\_rain} = -\frac{\pi}{4} Qi E_{ri} c_r Nr \left(\frac{\rho_0}{\rho_a}\right)^{0,4} M_r (2 + d_r) = -COLLIRG \quad (68)$$

Avec les mêmes simplifications, la perte en nombre des hydrométéores non précipitants, par collision/coalescence sur des hydrométéores précipitants s'écrit :

$$\left(\frac{\partial Nk}{\partial t}\right)_{coll\_j\_k} = -\int_0^\infty [D_j]^2 V(D_j) N_j G_j(D_j) dD_j \int_0^\infty \frac{\pi}{4} E_{jk} N_k G_k(D_k) dD_k \quad (69)$$

On calcule ainsi les termes sources et puits en nombre suivants :

- La perte par givrage des gouttelettes nuageuses sur la neige :

$$\left(\frac{\partial Nc}{\partial t}\right)_{coll\_cloud\_snow} = -\frac{\pi}{4} E_{cs} c_s Nc Ns \left(\frac{\rho_0}{\rho_a}\right)^{0,4} M_s (2 + d_s) = -COLLNCS \quad (70)$$

- La perte par givrage des gouttelettes nuageuses sur la neige roulée :

$$\left(\frac{\partial Nc}{\partial t}\right)_{coll\_cloud\_graup} = -\frac{\pi}{4} E_{cg} c_g Nc Ng \left(\frac{\rho_0}{\rho_a}\right)^{0,4} M_g (2 + d_g) = -COLLNCG \quad (71)$$

- La perte par givrage des gouttes de pluie sur la glace nuageuse (puits pour la pluie, source pour la neige et la neige roulée décrite par la suite en 1.4.6.2) :

$$\left(\frac{\partial Nr}{\partial t}\right)_{coll\_rain\_ice} = -\frac{\pi}{4} E_{ri} c_r Nr Ni \left(\frac{\rho_0}{\rho_a}\right)^{0,4} M_r (2 + d_r) = -COLLNRIG \quad (72)$$

- La perte de la glace nuageuse par collection sur la neige :

$$\left(\frac{\partial Ni}{\partial t}\right)_{coll\_ice\_snow} = -\frac{\pi}{4} E_{is} c_s Ni Ns \left(\frac{\rho_0}{\rho_a}\right)^{0,4} M_s (2 + d_s) = -COLLNIS \quad (73)$$

- La perte de la glace nuageuse par collection sur la pluie :

$$\left(\frac{\partial Ni}{\partial t}\right)_{coll\_ice\_rain} = -\frac{\pi}{4} E_{ir} c_r Ni Nr \left(\frac{\rho_0}{\rho_a}\right)^{0,4} M_r (2 + d_r) = -COLLNIRG \quad (74)$$

### 1.4.5.3. Collision/coalescence entre petits hydrométéores

- **Agrégation des cristaux de glace**

Les cristaux de glace, comme les gouttelettes nuageuses, sont amenés à croître par collision/coalescence des uns sur les autres. L'agrégation des cristaux de glace entre eux aboutit à la formation de cristaux de glace plus gros, mais aussi à la formation de flocons de neige. Ikawa et Saito, (1991) présentent une paramétrisation de la perte en nombre de cristaux de glace par agrégation entre eux donnant des flocons de neige, ce terme source pour la neige sera détaillé par la suite (cf. 1.4.6.1), et des cristaux de glace plus grands, tels que :

$$\left(\frac{\partial Ni}{\partial t}\right)_{autoagregation} = -\frac{(\pi/6) X * E_{ii} V_{imoy} D_{imoy}^2 Ni^2}{2} \quad (75)$$

Où X=0,25 représente la dispersion dans la vitesse de chute des cristaux de glace élémentaires.

C'est un terme puits pour la glace nuageuse. Ce terme est inclus dans le terme FORMNICE qui sera détaillé par la suite (cf. 1.4.6.1)

- **Givrage de l'eau nuageuse sur les cristaux de glace**

Dans le cas du givrage des gouttelettes nuageuses sur les cristaux de glace, l'équation de collection continue n'est pas simplifiable car la taille et la vitesse des gouttelettes et des cristaux de

glace sont du même ordre de grandeur, l'intégrale double de la valeur absolue demeure donc, et rend impossible la résolution analytique de cette équation. Ikawa et Saito (1991) proposent une paramétrisation faisant appel aux diamètres de la masse moyenne, qui permet de sortir la valeur absolue de l'intégrale double. Ils utilisent également une paramétrisation complexe de l'efficacité de collection  $E_{ic}$ . L'équation suivante présente la perte en rapport de mélange de gouttelettes nuageuses par givrage sur la glace primaire, et le gain pour la glace primaire et la neige roulée qui sera détaillé par la suite en 1.4.6.2 :

$$\begin{aligned} & \left( \frac{\partial Qi}{\partial t} \right)_{rim\_cloud\_ice} + \left( \frac{\partial Qg}{\partial t} \right)_{rim\_cloud\_ice} \\ &= \frac{\pi}{4} [D_{mi} + D_{mc}]^2 |V_i(D_{mi}) - V_c(D_{mc})| E_{ic} N_i \int_0^\infty N_c(D) \frac{m_c(D)}{\rho_a} dD = - \left( \frac{\partial Qc}{\partial t} \right)_{rim\_cloud\_ice} \\ &= RIMQI + RIMQG \end{aligned} \quad (76)$$

Avec :

$$E_{ic} = 0,572 \text{LOG}_{10}(\psi - 0,25) + 0,967 \quad (77)$$

$$\psi = D_{mc} \left[ \frac{\rho_w V_i(D_{mi})}{\phi D_{mi}} \right]^{\frac{1}{2}}$$

Et

$$\phi = 3,24 \cdot 10^{-4}$$

si  $\psi < 0,25$ , alors  $E_{ic} = 0$

L'intégrale restante n'est autre que le contenu en eau nuageuse  $Qc$ , quel que soit le type de distribution utilisée (ici la distribution lognormale pour l'eau nuageuse) :

$$RIMQI + RIMQG = \frac{\pi}{4} [D_{mi} + D_{mc}]^2 |V_i(D_{mi}) - V_c(D_{mc})| E_{ic} N_i Qc = - \left( \frac{\partial Qc}{\partial t} \right)_{rim\_cloud\_ice} \quad (78)$$

Ce terme représente un puits pour l'eau nuageuse et une source pour la glace nuageuse et la neige roulée. En effet, lorsque le givrage de l'eau nuageuse sur la glace élémentaire est intense par rapport au dépôt de vapeur, cela aboutit à produire des cristaux de glace de forte densité (le givrage donnant un hydrométéore glacé plus dense que le dépôt de vapeur), à tel point que l'on doit considérer qu'une partie de ces cristaux se transforment en neige roulée (traité en 1.4.6.2).

De plus la perte en nombre des gouttelettes par givrage sur la glace élémentaire s'écrit :

$$\left( \frac{\partial Nc}{\partial t} \right)_{rim\_cloud\_ice} = - \frac{\left( \frac{\partial Qc}{\partial t} \right)_{rim} Nc}{Qc} = -RIMNC \quad (79)$$

C'est un puits pour le nombre de gouttelettes nuageuses. Dans le cas où ces gouttelettes givrants sur de la glace élémentaire servent à produire de la neige roulée, on doit prendre en compte le gain en nombre de flocons de neige roulée : cet aspect est développé en 1.4.6.2.

#### **1.4.5.4. Collision/ coalescence entre hydrométéores précipitants**

- **Collection de la pluie avec la neige**

Pour la même raison que la collision/coalescence entre petits hydrométéores, le givrage par la collection de la pluie sur la neige ne peut être résolu de façon analytique à partir de l'équation de collection continue. Ikawa et Saito, (1991) proposent une paramétrisation de la différence de vitesse entre les deux catégories d'hydrométéores en utilisant la vitesse de chute moyenne en masse, où 'j' et 'k' représentent soit la pluie, soit la neige, selon que l'on veut la pluie collectée par la neige ou l'inverse.

$$\left( \frac{\partial Q_j}{\partial t} \right)_{coll\_j\_k} = \frac{\pi}{4} \sqrt{(\alpha V_{mj} + \beta V_{mk})^2 + \gamma V_{mj} V_{mk}} E_{jk} \int_0^\infty \int_0^\infty [D_j + D_k]^2 N_k G_k(D_k) dD_k N_j \frac{m_j(D_j)}{\rho_a} G_j(D_j) dD_j \quad (80)$$

avec  $\alpha = 1,2$  et  $\beta = 0,95$  et  $\gamma = 0,08$ .

L'intégration analytique ne pose alors plus de problèmes. Nous obtenons ainsi la perte par givrage de la pluie sur la neige en rapport de mélange, qui donne de la neige et de la neige roulée (la répartition entre la source pour la neige et pour la neige roulée sera décrite en 1.4.6.2) :

$$\begin{aligned} \left( \frac{\partial Q_r}{\partial t} \right)_{coll\_rain\_snow} &= -\frac{\pi}{4\rho_a} \sqrt{(\alpha V_{mr} + \beta V_{ms})^2 + \gamma V_{mr} V_{ms}} E_{rs} a_r N_r N_s [M_r(2 + b_r) + M_r(b_r) M_s(2) + 2M_r(b_r + 1) M_s(1)] \\ &= -COLLQRS \end{aligned} \quad (81)$$

La collection de la neige par la pluie utilise la même formulation et aboutit à former de la neige ainsi que de la neige roulée avec un facteur de répartition que nous verrons par la suite (cf. 1.4.6.2). La quantité de neige impliquée dont une partie restera de la neige et une autre sera transformée en neige roulée est alors donnée par :

$$\begin{aligned} \left( \frac{\partial Q_s}{\partial t} \right)_{coll\_snow\_rain\_total} &= -\frac{\pi}{4\rho_a} \sqrt{(\alpha V_{mr} + \beta V_{ms})^2 + \gamma V_{mr} V_{ms}} E_{rs} a_s N_r N_s [M_s(2 + b_s) + M_s(b_s) M_r(2) + 2M_s(b_s + 1) M_r(1)] \\ &= -COLLQSR \end{aligned} \quad (82)$$

Pour l'évolution en nombre, le même problème de valeur absolue non intégrable se pose, Ikawa et Saito, (1991) proposent une paramétrisation permettant de sortir le terme de différence de vitesse de l'intégrale en utilisant la vitesse de chute moyennée sur le nombre  $V_n$  (cf. 1.3.2) tel que :

$$\left( \frac{\partial N_j}{\partial t} \right) = \frac{\pi}{4} \sqrt{\alpha(V_{nj} - V_{nk})^2 + \beta V_{nj} V_{nk}} E_{jk} N_k N_j \int_0^\infty \int_0^\infty [D_j + D_k]^2 G_k(D_k) dD_k G_j(D_j) dD_j \quad (83)$$

Qui devient après intégration :

$$\begin{aligned} \left( \frac{\partial N_r}{\partial t} \right)_{coll\_rain\_snow} &= -\frac{\pi}{4} \sqrt{\alpha(V_{nr} - V_{ns})^2 + \beta V_{nr} V_{ns}} E_{rs} N_s N_r [M_r(2) + M_s(2) + 2M_r(1) M_s(1)] \\ &= -COLLNRS \end{aligned} \quad (84)$$

On obtient ainsi la perte en nombre des gouttes de pluie par givrage sur la neige, (terme puits pour la pluie), transféré en partie en neige roulée, correspondant à une perte en nombre de flocons de neige (terme développé en 1.4.6.2).

- **Collection de la pluie sur la neige roulée**

Enfin le givrage dû à la collection de la pluie par la neige roulée n'est pas non plus intégrable analytiquement à partir de l'équation de collection continue. Rutledge et Hobbs, (1984) proposent une paramétrisation de la différence de vitesse entre les deux catégories d'hydrométéores en utilisant la vitesse de chute moyenne en masse tel que :

$$\left( \frac{\partial Q_g}{\partial t} \right)_{coll\_rain\_graup} = \frac{\pi}{4} |V_{mg} - V_{mr}| E_{rg} \int_0^\infty \int_0^\infty [D_g + D_r]^2 N_g G_g(D_g) dD_g N_r \frac{m_r(D_r)}{\rho_a} G_r(D_r) dD_r \quad (85)$$

Où  $V_{mg}$  et  $V_{mr}$  représentent les vitesses de chute moyenne en masse de la neige roulée et de la pluie (cf. 1.3.2).

Après intégration on obtient :

$$\begin{aligned} \left( \frac{\partial Q_g}{\partial t} \right)_{coll\_rain\_graup} &= \frac{\pi}{4\rho_a} |V_{mg} - V_{mr}| E_{rg} a_r [M_r(2 + b_r) + M_r(b_r)M_g(2) + 2M_r(b_r + 1)M_g(1)] \\ - \left( \frac{\partial Q_r}{\partial t} \right)_{coll\_rain\_graup} &= COLLQRG \end{aligned} \quad (86)$$

Ce terme représente une source pour le rapport de mélange en neige roulée et un puits pour celui de la pluie.

La collection de la pluie par la neige roulée est aussi un puits pour le nombre de gouttes de pluie, nous utilisons de nouveau l'équation de collection continue entre la neige roulée et la pluie, mais en s'intéressant au nombre. L'intégration sur les vitesses pose là aussi un problème, Murakami (1990) propose une paramétrisation utilisant la vitesse de la masse moyenne utilisée par Milbrandt et Yau, (2005), telle que :

$$\left( \frac{\partial Nr}{\partial t} \right)_{coll\_rain\_graup} = -\frac{\pi}{4} \sqrt{(V_{mg} - V_{mr})^2 + 0.04V_{mg}V_{mr}} E_{rg} NgNr \int_0^\infty \int_0^\infty [D_g + D_r]^2 G(D_g) dD_g G(D_r) dD_r \quad (87)$$

Soit après intégration :

$$\begin{aligned} \left( \frac{\partial Nr}{\partial t} \right)_{coll\_rain\_graup} &= -\frac{\pi}{4} \sqrt{(V_{mg} - V_{mr})^2 + 0.04V_{mg}V_{mr}} E_{rg} NgNr [M_r(2) + M_g(2) + 2M_r(1)M_g(1)] \\ &= -COLLNRG \end{aligned} \quad (88)$$

On obtient ainsi la perte sur la concentration en nombre de la pluie due au givrage de la pluie sur la neige roulée, aucun gain en nombre pour la neige roulée n'est associé à ce mécanisme, celui-ci n'aboutissant qu'à former des flocons de neige roulée de taille supérieure.

- **Autocollection de la neige**

L'autocollection de la neige, c'est-à-dire la perte de flocons de neige par collection sur eux-mêmes pose le problème de la dispersion dans la vitesse des flocons de neige si on souhaite résoudre l'équation de collection suivante :

$$\left( \frac{\partial Ns}{\partial t} \right)_{autocoll\_snow} = -\frac{1}{2} \int_0^\infty \int_0^\infty \frac{\pi}{4} (D_i - D_j)^2 |V(D_i) - V(D_j)| E_{ss} N_i N_j G(D_i) G(D_j) dD_i dD_j \quad (89)$$

Où i et j représentent la neige.

Ferrier et al. (1994) présentent une paramétrisation qui s'inspire, en la généralisant aux distributions gamma, de la paramétrisation de Passarelli (1977) qui résolvait le problème de l'autoconversion de la neige avec une distribution Marshall Palmer de façon analytique à l'aide de la fonction hypergéométrique F. On obtient ainsi une solution de la forme :

$$\left( \frac{\partial Ns}{\partial t} \right)_{autocoll\_snow} = - \left( \frac{\rho_0}{\rho_a} \right)^{0.4} c E_{ss} N_s^2 \left( \frac{1}{D_n^\nu \Gamma(\nu)} \right)^2 D_n^{2+2\nu+d} I(\nu-1, d) = -AUTONSNOW \quad (90)$$

avec

$$I = \frac{\pi \Gamma(2+2\nu+d)}{2^{4+2\nu+d}} \sum_{k=1}^3 C_k \left[ \frac{F(1, 2+2\nu+d, k+\nu, 0.5)}{k+\nu-1} - \frac{F(1, 2+2\nu+d, k+\nu+d, 0.5)}{k+\nu-1+d} \right]$$

Où F est la fonction hypergéométrique, et  $C_k$  sont des coefficients tels que :

$$C_1=1$$

$$C_2=2$$

$$C_3=1$$

Ce terme est uniquement un puits pour le nombre de flocons de neige.

### 1.4.6. Echanges complexes entre types d'hydrométéores

#### 1.4.6.1. Formation de la neige depuis la glace nuageuse

La croissance des cristaux de glace nuageuse par givrage et dépôt de vapeur aboutit à la formation de deux catégories de glace précipitante : la neige et la neige roulée. Nous nous intéressons ici à la formation de la neige. Le changement de catégorie de glace nécessite de choisir une masse 'XMS0' au dessus de laquelle le cristal de glace sera considéré comme trop gros pour rester dans la catégorie glace nuageuse, et devra passer dans la catégorie neige. Ikawa et Saito, (1991) proposent une paramétrisation calculant le temps que met un cristal de glace nuageuse pour passer de sa masse actuelle à la masse seuil de la neige, par dépôt de vapeur et givrage :

$$\Delta\tau = \frac{Ni(XMS0 - \overline{m}_i)}{\left( \left( \frac{\partial Qi}{\partial t} \right)_{dep\_vap\_ice} + \left( \frac{\partial Qi}{\partial t} \right)_{rim\_cloud\_ice} \right)} \quad (91)$$

Avec  $XMS0 = 1,77 \cdot 10^{-10}$  kg (Thompson et al., 2004), et où  $\overline{m}_i$  est la masse moyenne des cristaux de glace (cf. 1.3.2)

Si la masse moyenne des cristaux de glace est inférieure à la moitié de la masse seuil des flocons neige, la paramétrisation d'Ikawa et Saito, (1991) s'écrit :

$$\left( \frac{\partial Qs}{\partial t} \right)_{dep\&rim} = \frac{1}{\Delta\tau} \rho_a Qi = \frac{\overline{m}_i}{XMS0 - \overline{m}_i} \left( \left( \frac{\partial Qi}{\partial t} \right)_{dep\_vap\_ice} + \left( \frac{\partial Qi}{\partial t} \right)_{rim\_cloud\_ice} \right) = - \left( \frac{\partial Qi}{\partial t} \right)_{dep\&rim} \quad (92)$$

Si la masse moyenne des cristaux de glace se rapproche de la masse seuil des flocons de neige, la valeur de la formule ci-dessus devient très grande du fait que  $\overline{m}_i$  et XMS0 sont très proches, ce qui donne des résultats erronés. Pour éviter cela, Ikawa et Saito, (1991) proposent alors une autre paramétrisation lorsque la masse moyenne des cristaux de glace est supérieure à XMS0/2 :

$$\left( \frac{\partial Qs}{\partial t} \right)_{dep\&rim} = \left( \left( \frac{\partial Qi}{\partial t} \right)_{dep\_vap\_ice} + \left( \frac{\partial Qi}{\partial t} \right)_{rim\_cloud\_ice} \right) + \left( 1 - \frac{0.5 XMS0}{\overline{m}_i} \right) \frac{Qi}{\Delta\tau} = - \left( \frac{\partial Qi}{\partial t} \right)_{dep\&rim} \quad (93)$$

C'est un terme source pour le rapport de mélange en neige et un terme puits pour celui de la glace nuageuse.

La perte en nombre des cristaux de glace par dépôt de vapeur et givrage est l'opposé du gain en nombre des flocons de neige :

$$\left( \frac{\partial Ni}{\partial t} \right)_{dep\&rim} = - \left( \frac{\partial Qs}{\partial t} \right)_{dep\&rim} (\rho_a / XMS0) = - \left( \frac{\partial Ns}{\partial t} \right)_{dep\&rim} \quad (94)$$

Il existe un autre mécanisme de formation de la neige depuis la glace nuageuse : l'agrégation des cristaux de glace qui aboutit à former des cristaux plus gros pouvant dépasser la masse critique XMS0, et ainsi former de la neige, c'est l'autoconversion de la glace primaire. En résumé, l'agrégation des cristaux de glace entre eux donne soit des cristaux de glace de plus grande taille (cf. 1.4.5.3), soit des flocons de neige. Murakami et al. (1990) ont développé la paramétrisation suivante pour la partie aboutissant à la formation de neige :

$$\left( \frac{\partial Qs}{\partial t} \right)_{agregation} = \frac{Qi}{\Delta\tau_1} = - \left( \frac{\partial Qi}{\partial t} \right)_{agregation} \quad (95)$$

Où :

$$\Delta\tau_1 = -\frac{2\rho_{ice}}{(\pi/6)V_{mi}D_{mi}^2XE_{ii}}\log_{10}\left(\frac{D_{mi}}{DS0}\right)^3$$

Avec

$DS0 = 1,5 \cdot 10^{-4}$  m, diamètre du plus petit flocon de neige d'après Reisner et al. (1998).

$X = 0,25$  est la dispersion de la vitesse de chute des cristaux de glace

$E_{ii} = 0,1$  est le coefficient d'efficacité de collection des cristaux de glace sur eux-mêmes

Enfin, la perte en nombre de cristaux de glace par autoconversion donnant de la neige est paramétrée de telle sorte que les cristaux perdus ont la masse moyenne des cristaux de glace (Reisner et al., 1998) :

$$\left(\frac{\partial Ni}{\partial t}\right)_{agregation} = -\left(\frac{\partial Qs}{\partial t}\right)_{agregation} \rho_a / \overline{m_i} = -\left(\frac{\partial Ns}{\partial t}\right)_{agregation} \quad (96)$$

Finalement, le terme source pour la neige, et puits pour la glace nuageuse en rapport de mélange par ces processus est :

$$\left(\frac{Qs}{\partial t}\right)_{agregation} + \left(\frac{\partial Qs}{\partial t}\right)_{dep\&rim} = \left(\frac{\partial Qs}{\partial t}\right)_{form\_snow} = -\left(\frac{\partial Qi}{\partial t}\right)_{form\_snow} = FORMQS \quad (97)$$

Et pour la concentration en nombre, le terme source pour la neige donne :

$$\left(\frac{\partial Ns}{\partial t}\right)_{agregation} + \left(\frac{\partial Ns}{\partial t}\right)_{dep\&rim} = \left(\frac{\partial Ns}{\partial t}\right)_{form\_snow} = -\left(\frac{\partial Ni}{\partial t}\right)_{form\_snow} = FORMNS \quad (98)$$

Tandis que pour la concentration en nombre de la glace nuageuse, le terme puits est :

$$\left(\frac{\partial Ni}{\partial t}\right)_{form\_snow} + \left(\frac{\partial Ni}{\partial t}\right)_{autoagregation} = -FORMNICE \quad (99)$$

(Voir équation (75) pour le terme  $\left(\frac{\partial Ni}{\partial t}\right)_{autoagregation}$ )

#### **1.4.6.2. Mécanismes de production de la neige roulée**

##### **• Production de neige roulée par collection de la pluie par la neige roulée et par la neige**

La perte en gouttes de pluie en nombre et en rapport de mélange par collision/coalescence sur la neige et la neige roulée a déjà été détaillée précédemment (cf. 1.4.5.4). Lors de la collision avec la neige roulée, Reisner et al. (1998) considèrent que la pluie se transforme intégralement en neige roulée, c'est un terme puits pour la pluie en rapport de mélange et en nombre, et une source pour la neige roulée en rapport de mélange.

Lors de la collision avec la neige, cette pluie, selon le niveau de givrage, est amenée à former de la neige et de la neige roulée. Ikawa et Saito (1991) proposent une paramétrisation en fonction d'un facteur de répartition  $\alpha_{rs}$  qui est donné par :

$$\alpha_{rs} = \frac{\int_0^{\infty} m_s^2 G(D_s) dD_s}{\int_0^{\infty} m_s^2 G(D_s) dD_s + \int_0^{\infty} m_r^2 G(D_r) d(D_r)} \quad (100)$$

On intègre en utilisant le théorème des moments, d'où :

$$\alpha_{rs} = \frac{a_s M_s(2b_s)}{a_s M_s(2b_s) + a_r M_r(2b_r)} \quad (101)$$

D'un point de vue physique cette paramétrisation revient à dire que si la masse du flocon de neige entrant en collision avec la goutte de pluie est très supérieure à la masse de la goutte, le givrage est faible, la neige conserve une densité relativement faible et reste en plus grande partie de la neige ( $\alpha_{rs}$  proche de 1). Dans le cas contraire le givrage est fort, et la densité de l'hydrométéore

obtenu devient plus grande, ce qui favorise l'apparition d'hydrométéores denses : la neige roulée ( $\alpha_{rs}$  proche de 0). Suivant ce raisonnement, la paramétrisation présentée par Ikawa et Saito (1991) utilise les équations suivantes :

La partie de la neige collectée par la pluie (cf. 1.4.5.4) donnant de la neige roulée, puis pour la neige, source pour la neige roulée :

$$\begin{aligned} \left( \frac{\partial Qg}{\partial t} \right)_{coll\_snow\_rain} &= -(1 - \alpha_{rs}) \left( \frac{\partial Qs}{\partial t} \right)_{coll\_snow\_rain\_total} = (1 - \alpha_{rs}) COLLQSR \\ &= COLLQSRG = - \left( \frac{\partial Qs}{\partial t} \right)_{coll\_snow\_rain} \end{aligned} \quad (102)$$

La partie de la neige collectée par la pluie restant de la neige est alors  $(\alpha_{rs}) COLLQSR$

La partie de la pluie collectée par la neige donnant de la neige roulée :

$$\left( \frac{\partial Qg}{\partial t} \right)_{coll\_rain\_snow} = (1 - \alpha_{rs}) COLLQRS = COLLQRSG \quad (103)$$

La partie de la pluie collectée par la neige donnant de la neige :

$$\left( \frac{\partial Qs}{\partial t} \right)_{coll\_rain\_snow} = (\alpha_{rs}) COLLQRS = COLLQRSS \quad (104)$$

Notons que  $COLLQRS = COLLQRSG + COLLQRSS$ , la conservation de la matière est respectée.

La collection de la pluie par la neige (et inversement) modifie aussi la répartition en nombre entre les différentes catégories d'hydrométéores.

L'équation de collection en nombre de la neige sur la pluie, et de la pluie sur la neige étant identique, selon la paramétrisation présentée par Ikawa et Saito (1991), nous avons :

$$COLLNRS = COLLNSR \quad (105)$$

Ikawa et Saito (1991) présentent une paramétrisation du gain en nombre de flocons de neige roulé utilisant aussi le facteur de répartition  $\alpha_{rs}$  telle que :

$$\left( \frac{\partial Ng}{\partial t} \right)_{coll\_snow\_rain} = (1 - \alpha_{rs}) COLLNRS = COLLNRSG \quad (106)$$

Ce gain en nombre de flocons de neige roulée correspond à une perte en nombre de flocons de neige :

$$\left( \frac{\partial Ns}{\partial t} \right)_{coll\_snow\_rain} = -COLLNSRG \quad (107)$$

Attention, il ne faut ajouter qu'une fois le terme COLLNRSG dans les sources de neige roulée, car en nombre, la perte d'une goutte de pluie et d'un flocon de neige (chacun de même grandeur que COLLNRSG, en négatif) ne donne naissance qu'à un seul flocon de neige roulée. Enfin, en toute logique, la production de neige par collision entre la neige et la pluie n'aboutit pas à la formation de nouveaux flocons de neige.

- **Production de neige roulée depuis la glace élémentaire et les gouttelettes nuageuses**

Quand le givrage de l'eau nuageuse sur la glace nuageuse se produit, cela aboutit à des cristaux de glace de forte densité (le givrage donnant un hydrométéore glacé plus dense que le dépôt de vapeur), à tel point que l'on doit considérer qu'une partie de ces cristaux se transforment en neige roulée. La paramétrisation choisie est celle présentée dans Reisner et al. (1998), qui produit de la neige roulée depuis l'eau nuageuse si le givrage de l'eau nuageuse sur la glace nuageuse (équation (76)) est supérieur au dépôt de vapeur sur la même glace nuageuse (équation (52)) telle que :

$$\left(\frac{\partial Qg}{\partial t}\right)_{rim\_cloud\_ice} = \max\left(\left|\left(\frac{\partial Qc}{\partial t}\right)_{rim\_cloud\_ice}\right| - \left(\frac{\partial Qi}{\partial t}\right)_{dep\_vap\_ice}, 0\right) = RIMQG \quad (108)$$

On déduit de ce terme à partir de l'équation (76), la perte en rapport de mélange de la glace nuageuse RIMQI.

De plus, une partie de la glace nuageuse sur laquelle givre l'eau nuageuse donne de la neige roulée, selon une paramétrisation présentée par Ikawa et Saito (1991) telle que :

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial Qg}{\partial t}\right)_{rim\_ice\_cloud} &= \frac{\rho_a Qi \max\left(\left|\left(\frac{\partial Qc}{\partial t}\right)_{rim\_cloud\_ice}\right| - \left(\frac{\partial Qi}{\partial t}\right)_{dep\_vap\_ice}, 0\right)}{(XMG0 - m_i) Ni} \\ &= -\left(\frac{\partial Qi}{\partial t}\right)_{rim\_ice\_cloud} = RIMQIG \end{aligned} \quad (109)$$

Avec :

$XMG0 = 1,6 \cdot 10^{-10}$  kg, représente la masse minimale des flocons de neige roulée selon Ikawa et Saito (1991).

Pour la production en nombre de flocons de neige roulée par givrage de l'eau nuageuse sur la glace nuageuse, Reisner et al. (1998) considèrent que l'on forme des flocons de neige roulée dont la masse est  $XMG0$ , la masse minimale seuil de la neige roulée tel que :

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial Ng}{\partial t}\right)_{rim\_ice\_cloud} &= \frac{\rho_a \left(\left(\frac{\partial Qg}{\partial t}\right)_{rim\_cloud\_ice} + \left(\frac{\partial Qg}{\partial t}\right)_{rim\_ice\_cloud}\right)}{XMG0} \\ &= -\left(\frac{\partial Ni}{\partial t}\right)_{rim\_ice\_cloud} = RIMNIG \end{aligned} \quad (110)$$

- **Production de neige roulée par givrage de l'eau nuageuse sur la neige**

Murakami et al. (1990) ont présenté une paramétrisation selon laquelle si le givrage des gouttelettes nuageuses sur la pluie dépasse le dépôt de vapeur, l'intégralité du givrage ainsi qu'une partie de la neige sert à produire de la neige roulée. Cependant, les flocons de neige roulée ainsi produit sont de masse  $XMG0$  (Reisner et al., 1998), masse très faible, alors même que le processus de givrage sur la neige est favorisé par des vitesses de chutes importantes de celle-ci, donc favorisé sur les plus gros flocons de neige. La production de neige roulée de grande ou petite masse a un impact sur la microphysique et la chimie. Dans le modèle RAMS, Meyers et al. (1997) donnent un point de vue différent et considèrent que l'on forme des flocons de neige roulée massifs par givrage de l'eau nuageuse sur la neige. C'est le point de vue qui a été adopté dans M2C2.

La transformation de la neige en neige roulée est difficile à définir tant la frontière entre ces deux types d'hydrométéores est floue. La paramétrisation de Meyers et al. (1997) considère que le givrage de l'eau nuageuse sur la neige commence à produire de la neige roulée si ce givrage excède le dépôt de vapeur sur la neige. C'est cet excès de givrage par rapport au dépôt de vapeur qui formera des flocons de neige roulée tel que :

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial Qg}{\partial t}\right)_{coll\_cloud\_snow} &= MAX\left\{\left|\left(\frac{\partial Qc}{\partial t}\right)_{coll\_cloud\_snow}\right| - MAX\left(\left(\frac{\partial Qs}{\partial t}\right)_{dep\_vap\_snow}, 0\right), 0\right\} \\ &= COLQCSG \end{aligned} \quad (111)$$

L'autre partie de l'eau nuageuse perdue par ce processus alimente le rapport de mélange en neige :



$$\left(\frac{\partial Q_s}{\partial t}\right)_{coll\_cloud\_snow} = \left|\left(\frac{\partial Q_c}{\partial t}\right)_{coll\_cloud\_snow}\right| - \left(\frac{\partial Q_g}{\partial t}\right)_{coll\_cloud\_snow} = COLLQCSS \quad (112)$$

Ce terme est donc soit nul, soit égal au terme de dépôt de vapeur sur la neige.

De plus les flocons qui givrent le plus sont ceux qui chutent le plus vite, donc ceux de plus grande taille, c'est la raison pour laquelle la paramétrisation de Meyers et al. (1997) considère que les flocons de neige roulée formés par givrage de la neige ont une masse deux fois supérieure à la masse moyenne de la neige. Ainsi, le nombre de flocons de neige roulée formé est calculé de telle sorte que l'on produise des flocons de neige roulée deux fois plus massifs que la neige. C'est un terme source pour la neige roulée et puits pour la neige :

$$\left(\frac{\partial N_g}{\partial t}\right)_{coll\_cloud\_snow} = \left(\frac{\partial Q_g}{\partial t}\right)_{coll\_cloud\_snow} \left(\frac{\rho_a}{2m_s}\right) = -\left(\frac{\partial N_s}{\partial t}\right)_{coll\_cloud\_snow} = COLNSAMBG \quad (113)$$

- **Production de neige roulée par givrage de la pluie sur la glace nuageuse**

Le givrage de la pluie sur la glace nuageuse a déjà été présenté précédemment (cf. 1.4.5.2). Ce givrage aboutit à la formation de neige roulée et de neige. Thompson et al. (2004) présentent un facteur de répartition D1 permettant de distribuer les produits de ce givrage entre la neige et la neige roulée.

$$\text{Soit } D1 = \sin(\text{teta}) \text{ avec } \text{teta} = 0.5 * \pi * (1 - 10^4 * \text{MIN}(Q_r, 1.10^{-4})) \quad (114)$$

La partie transférée en neige provenant de la pluie et de la glace nuageuse est telle que :

$$\left(\frac{\partial Q_s}{\partial t}\right)_{coll\_rain\_ice} = D1 \left(\frac{\partial Q_r}{\partial t}\right)_{coll\_rain\_ice} = D1(COLLQRIG) \quad (115)$$

$$\left(\frac{\partial Q_s}{\partial t}\right)_{coll\_ice\_rain} = D1 \left(\frac{\partial Q_i}{\partial t}\right)_{coll\_ice\_rain} = D1(COLLQIRG)$$

$$\left(\frac{\partial N_s}{\partial t}\right)_{coll\_rain\_ice} = D1 \left(\frac{\partial N_r}{\partial t}\right)_{coll\_rain\_ice} = D1(COLLNRIG) \quad (116)$$

Alors que la partie transférée en neige roulée est :

$$\left(\frac{\partial Q_g}{\partial t}\right)_{coll\_rain\_ice} = (1 - D1) \left(\frac{\partial Q_r}{\partial t}\right)_{coll\_rain\_ice} = (1 - D1)COLLQRIG \quad (117)$$

$$\left(\frac{\partial Q_g}{\partial t}\right)_{coll\_ice\_rain} = (1 - D1) \left(\frac{\partial Q_i}{\partial t}\right)_{coll\_ice\_rain} = (1 - D1)COLLQIRG$$

$$\left(\frac{\partial N_g}{\partial t}\right)_{coll\_rain\_ice} = (1 - D1) \left(\frac{\partial N_r}{\partial t}\right)_{coll\_rain\_ice} = (1 - D1)COLLNRIG \quad (118)$$

- **Production de neige roulée depuis la pluie par congélation hétérogène**

La pluie est aussi amenée à changer de phase par congélation hétérogène selon le mécanisme présenté par Bigg (1953) et détaillé par Wisner et al. (1972), mécanisme similaire à celui déjà présenté pour la congélation hétérogène des gouttelettes nuageuses (cf. 1.3.3.2), avec les mêmes coefficients A et B. L'évolution en nombre s'écrit :

$$\left(\frac{\partial N_r}{\partial t}\right)_{freez\_rain} = -\int_0^\infty \frac{\pi}{6} D_r^3 B [EXP(A(T_0 - T)) - 1] N_r G_r(D_r) d(D_r) = -\left(\frac{\partial N_g}{\partial t}\right)_{freez\_rain} \quad (119)$$

Donnant après intégration :

$$\left(\frac{\partial N_r}{\partial t}\right)_{freez\_rain} = -\frac{\pi}{6} N_r B [EXP(A(T_0 - T)) - 1] M_r(3) = -\left(\frac{\partial N_g}{\partial t}\right)_{freez\_rain} = FREZNR \quad (120)$$

L'évolution en rapport de mélange s'écrit :

$$\left(\frac{\partial Q_r}{\partial t}\right)_{\text{freez\_rain}} = -\int_0^\infty \frac{\pi}{6} D_r^3 B[EXP(A(T_0 - T)) - 1] \frac{Nr}{\rho_a} a_r D_r^{b_r} G_r(D_r) d(D_r) = -\left(\frac{\partial Q_g}{\partial t}\right)_{\text{freez\_rain}} \quad (121)$$

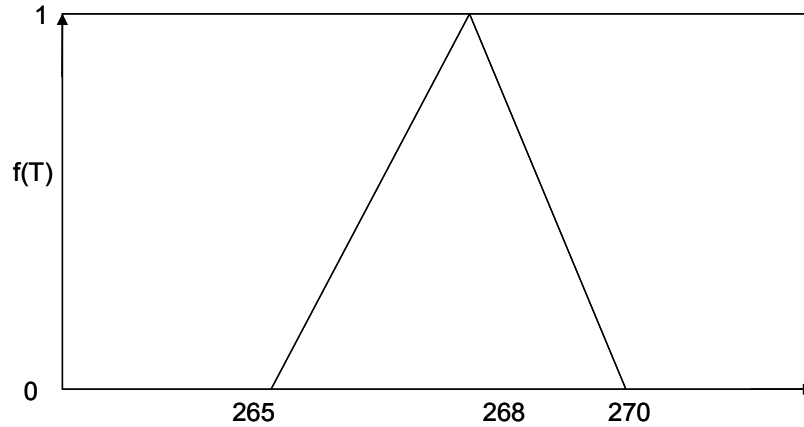
$$\left(\frac{\partial Q_r}{\partial t}\right)_{\text{freez\_rain}} = -\frac{\pi}{6} \frac{Nr}{\rho_a} a_r B[EXP(A(T_0 - T)) - 1] M_r (3 + b_r) = -\left(\frac{\partial Q_r}{\partial t}\right)_{\text{freez\_rain}} = \text{FREEZQR} \quad (122)$$

#### 1.4.6.3. Processus de multiplication de la glace nuageuse par éclatement

Hallet et Mossop (1974) ont présenté une paramétrisation de la formation de cristaux de glace par un mécanisme dont la source est la collection de gouttelettes nuageuses qui éclatent lors de leur collision/congélation sur des flocons de neige et de neige roulée. C'est un processus fonction de la température et qui n'est actif qu'entre des températures de 265 K et 270 K, avec un maximum à 268 K et dont l'efficacité suit la fonction  $f(T)$  donnée figure (18).

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial Ni}{\partial t}\right)_{\text{ice\_mult}} &= \rho_a 3,5 \cdot 10^8 f(T) \left( \left| \left(\frac{\partial Q_c}{\partial t}\right)_{\text{coll\_cloud\_snow}} \right| + \left| \left(\frac{\partial Q_c}{\partial t}\right)_{\text{coll\_cloud\_graup}} \right| \right) \\ &= \rho_a 3,5 \cdot 10^8 f(T) (\text{COLLQCS} + \text{COLLQCG}) = \text{XICEMN} \end{aligned} \quad (123)$$

Ce terme est une source pour le nombre de cristaux de glace.



**Figure 18: Efficacité du mécanisme de production de glace nuageuse par givrage des gouttelettes sur la neige et la neige roulée en fonction de la température selon Hallet et Mossop (1974).**

Les cristaux de glace produits à l'aide de ce mécanisme sont considérés comme les plus petits possibles et donc ayant une masse de  $XMI0$  (Reisner et al., 1998). La paramétrisation du gain en rapport de mélange en glace primaire par ce mécanisme est donc donnée par l'équation suivante :

$$\left(\frac{\partial Qi}{\partial t}\right)_{\text{ice\_mult}} = \left(\frac{\partial Ni}{\partial t}\right)_{\text{ice\_mult}} \frac{XMI0}{\rho_a} = \text{XICEMQ} \quad (124)$$

Ce terme est une source pour le rapport de mélange en glace nuageuse, et un puits pour la neige ainsi que la neige roulée, au prorata de leur givrage respectif par l'eau nuageuse, tel que :

$$\left(\frac{\partial Q_s}{\partial t}\right)_{\text{ice\_mult}} = -\left(\frac{\partial Qi}{\partial t}\right)_{\text{ice\_mult}} \left( \frac{\text{COLLQCS}}{(\text{COLLQCS} + \text{COLLQCG})} \right) = \text{XICEMQS} \quad (125)$$

$$\left(\frac{\partial Q_g}{\partial t}\right)_{\text{ice\_mult}} = -\left(\frac{\partial Qi}{\partial t}\right)_{\text{ice\_mult}} \left( \frac{\text{COLLQCG}}{(\text{COLLQCS} + \text{COLLQCG})} \right) = \text{XICEMQG} \quad (126)$$

#### 1.4.6.4. Fonte des hydrométéores

##### • Fonte des hydrométéores dans un air à température positive

Dès que la température devient positive, les hydrométéores glacés commencent à fondre.

- Pour la glace nuageuse, nous considérons que, au vu de la taille des cristaux de glace élémentaire, dès que la température devient positive, tous les cristaux de glace fondent et se transforment en autant de gouttelettes nuageuses (Reisner et al., 1998).
- Pour la neige et la neige roulée, leur taille est suffisamment importante pour que nous prenions en compte leur fonte progressive.

Les hydrométéores glacés soumis à des températures positives commencent à fondre. La fonte de la neige et de la neige roulée est traitée à l'aide de la paramétrisation présentée par Rutledge et Hobbs (1983) telle que la variation de la masse par fonte par unité de temps (Mason et al., 1971) est donnée par :

$$\left( \frac{\partial m_j}{\partial t} \right)_{\text{melt}_j} = \frac{-2\pi}{\rho_a L_f} K_a D_j (T - T_0) \bar{f}_j \quad (127)$$

Avec  $L_f = (79,9 + 0,485(T - T_0) - 2,5 \cdot 10^{-3}(T - T_0)^2) 1000 \cdot 4,18684$  où  $L_f$  représente la chaleur latente de fusion (J/kg),  $K_a$  la conductivité thermique de l'air, 'j' représente soit la neige, soit la neige roulée.

On multiplie par le nombre de flocons de neige et par la distribution, puis on intègre sur tout le domaine des tailles de l'hydrométéore j :

$$\left( \frac{\partial Q_j}{\partial t} \right)_{\text{melt}_j} = \int_0^\infty \left( \frac{\partial m_j}{\partial t} \right)_{\text{melt}} N_j G_j(D) dD \quad (128)$$

Or le facteur de ventilation est fonction de la vitesse, donc du diamètre des flocons de neige. Nous utilisons donc le théorème des moments pour intégrer l'équation précédente et nous obtenons un terme source pour la pluie et puits pour la neige :

$$\begin{aligned} - \left( \frac{\partial Q_s}{\partial t} \right)_{\text{melt}_\text{snow}} &= \frac{2\pi}{\rho_a L_f} K_a (T - T_0) N_s \left[ \bar{f}_{s0} M_s (1) + \bar{f}_{s1} \left( \frac{\rho_a}{\eta} \right)^{\frac{1}{2}} Scv^{\frac{1}{3}} \left( c_s (\rho_a / \rho_0)^{0,4} \right)^{\frac{1}{2}} M_s \left( \frac{3 + d_s}{2} \right) \right] \\ &= \left( \frac{\partial Q_r}{\partial t} \right)_{\text{melt}_\text{snow}} = XMELTQS \end{aligned} \quad (129)$$

Le cas de la neige roulée est identique à celui de la neige.

$$- \left( \frac{\partial Q_g}{\partial t} \right)_{\text{melt}_\text{graup}} = \left( \frac{\partial Q_r}{\partial t} \right)_{\text{melt}_\text{graup}} = XMELTQG \quad (130)$$

L'évolution du nombre de flocons de neige et de neige roulée par fonte est paramétrée en considérant que le nombre de flocons perdu est proportionnel à la quantité de neige et de neige roulée fondue (Reisner et al., 1998 ; Milbrandt et Yau, 2005) tel que :

$$- \left( \frac{\partial N_s}{\partial t} \right)_{\text{melt}_\text{snow}} = (N_s / Q_s) \left( \frac{\partial Q_s}{\partial t} \right)_{\text{melt}_\text{snow}} = \left( \frac{\partial N_r}{\partial t} \right)_{\text{melt}_\text{snow}} = XMELTNS \quad (131)$$

$$- \left( \frac{\partial N_g}{\partial t} \right)_{\text{melt}_\text{graup}} = (N_g / Q_g) \left( \frac{\partial Q_g}{\partial t} \right)_{\text{melt}_\text{graup}} = \left( \frac{\partial N_r}{\partial t} \right)_{\text{melt}_\text{graup}} = XMELTNG \quad (132)$$

où chaque flocon fondu donne naissance à une goutte de pluie.

##### • Fonte des hydrométéores par collision/coalescence avec des hydrométéores liquides

La fonte des hydrométéores glacés précipitants se produit également lors des phénomènes de collision/coalescence entre des hydrométéores liquides et des hydrométéores glacés à température positive. La capacité calorifique de l'eau liquide au dessus de 0°C sert à faire fondre la glace en présence. Lin et al. (1983) considèrent que la collection de l'eau nuageuse et de la pluie par

l'hydrométéore glacé précipitant sert à fabriquer de la pluie. C'est donc un terme source pour la pluie et puits pour l'hydrométéore glacé précipitant, ici la neige roulée :

$$\begin{aligned} \left( \frac{\partial Qr}{\partial t} \right)_{melt\_rain\_graup} &= Cp_w(T - T_0) \left( \frac{\partial Qg}{\partial t} \right)_{coll\_rain\_graup} / L_f \\ &= - \left( \frac{\partial Qg}{\partial t} \right)_{melt\_rain\_graup} = XMELTRG \end{aligned} \quad (133)$$

$$\begin{aligned} \left( \frac{\partial Qr}{\partial t} \right)_{melt\_cloud\_graup} &= Cp_w(T - T_0) \left( \frac{\partial Qg}{\partial t} \right)_{coll\_cloud\_graup} / L_f \\ &= - \left( \frac{\partial Qg}{\partial t} \right)_{melt\_cloud\_graup} = XMELTCG \end{aligned} \quad (134)$$

où  $Cp_w$  est la capacité calorifique de l'eau liquide.

L'évolution du nombre de flocons de neige roulée est telle que la perte en nombre soit proportionnelle à la perte en rapport de mélange (Milbrandt et Yau, 2005), c'est un terme source pour le nombre de gouttes de pluie :

$$\begin{aligned} \left( \frac{\partial Nr}{\partial t} \right)_{melt\_graup} &= (Ng / Qg) \left( \left( \frac{\partial Qg}{\partial t} \right)_{melt\_rain\_graup} + \left( \frac{\partial Qg}{\partial t} \right)_{melt\_cloud\_graup} \right) \\ &= - \left( \frac{\partial Ng}{\partial t} \right)_{melt\_graup} = XMELTNCRG \end{aligned} \quad (135)$$

La neige est moins dense que la neige roulée et tend à fondre plus vite que cette dernière par conductivité thermique de l'air, le terme de fonte par collision/coalescence d'hydrométéores liquide sur la neige est donc souvent négligé dans les paramétrisations microphysiques (Thompson et al., 2004). Il n'a pas été pris en compte dans la version actuelle de M2C2.

#### **1.4.6.5. Perte par sédimentation**

La sédimentation des hydrométéores précipitants (neige, neige roulée, pluie) représente un puits net pour ces hydrométéores, elle est paramétrée de la même façon que pour la pluie dans la version précédente pour les nuages chauds de M2C2 : Le taux de sédimentation en rapport de mélange s'écrit, pour un hydrométéore 'j' :

$$\left( \frac{\partial Qj}{\partial t} \right)_{sed\_j} = \left( \frac{\partial S_{Qj}}{\partial t} \right) \frac{1}{w} \text{ Avec } \left( \frac{\partial S_{Qj}}{\partial t} \right) = - \int_0^\infty Nj G_j(D) V_j(D) \frac{m_j(D)}{\rho_a} dD \quad (136)$$

Après intégration nous obtenons :

$$\left( \frac{\partial Qr}{\partial t} \right)_{sed\_rain} = - \frac{Nr}{\rho_a} a_r c_r \left( \frac{\rho_a}{\rho_0} \right)^{0.4} M_r (b_r + d_r) \frac{1}{w} = -SEDQR \quad (137)$$

$$\left( \frac{\partial Qs}{\partial t} \right)_{sed\_snow} = - \frac{Ns}{\rho_a} a_s c_s \left( \frac{\rho_a}{\rho_0} \right)^{0.4} M_s (b_s + d_s) \frac{1}{w} = -SEDQS \quad (138)$$

$$\left( \frac{\partial Qg}{\partial t} \right)_{sed\_graup} = - \frac{Ng}{\rho_a} a_g c_g \left( \frac{\rho_a}{\rho_0} \right)^{0.4} M_g (b_g + d_g) \frac{1}{w} = -SEDQG \quad (139)$$

De même les termes représentant les flux de pluie, neige et neige roulée en nombre s'écrivent:

$$\left( \frac{\partial Nj}{\partial t} \right)_{sed\_j} = \left( \frac{\partial S_{Nj}}{\partial t} \right) \frac{1}{w} \text{ Avec } \left( \frac{\partial S_{Nj}}{\partial t} \right) = - \int_0^\infty Nj G_j(D) V_j(D) dD \quad (140)$$

Et donnent après intégration :

$$\left(\frac{\partial Nr}{\partial t}\right)_{sed\_rain} = -Nr * c_r \left(\frac{\rho_a}{\rho_a}\right)^{0.4} M_r(d_r) \frac{1}{w} = -SEDNR \quad (141)$$

$$\left(\frac{\partial Ns}{\partial t}\right)_{sed\_snow} = -Ns * c_s \left(\frac{\rho_a}{\rho_a}\right)^{0.4} M_s(d_s) \frac{1}{w} = -SEDNS \quad (142)$$

$$\left(\frac{\partial Ng}{\partial t}\right)_{sed\_graup} = -Ng * c_g \left(\frac{\rho_a}{\rho_a}\right)^{0.4} M_g(d_g) \frac{1}{w} = -SEDNG \quad (143)$$

#### 1.4.7. Equations prédictives du rapport de mélange et de la concentration en nombre

Les figures (19) et (20) présentent les schémas des mécanismes microphysiques pour les rapports de mélange et les contenus en nombre.

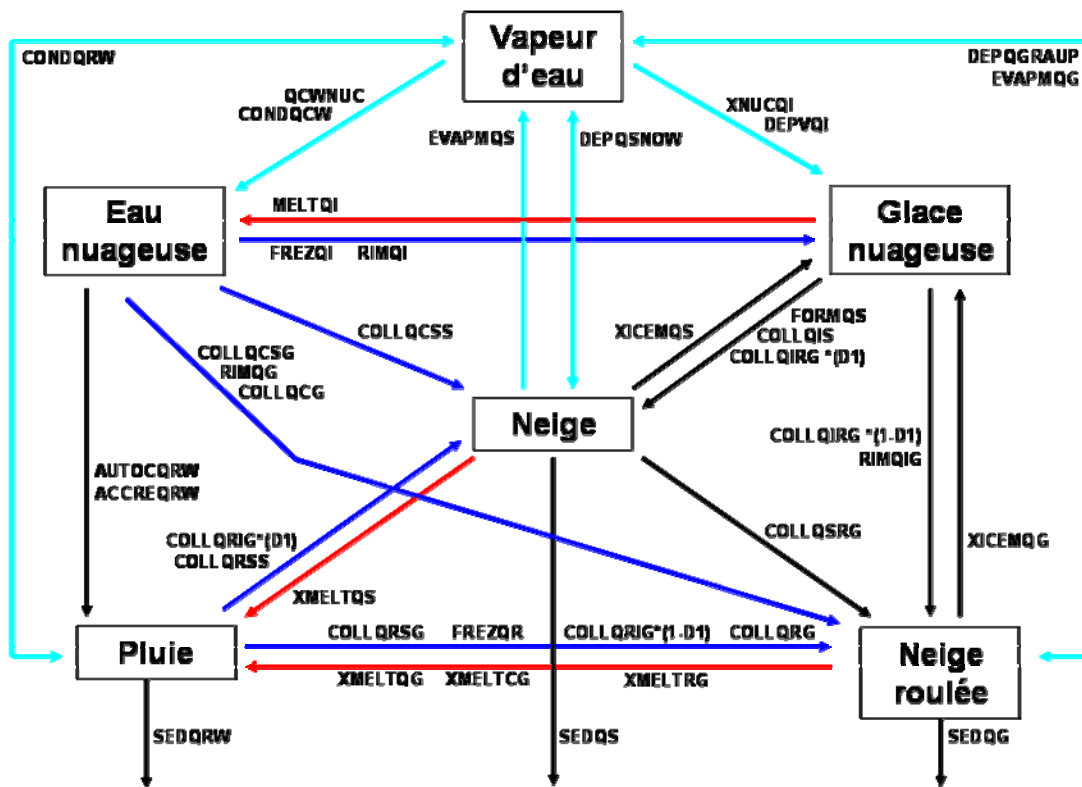


Figure 19 : Mécanismes microphysiques d'échanges pour les rapports de mélange

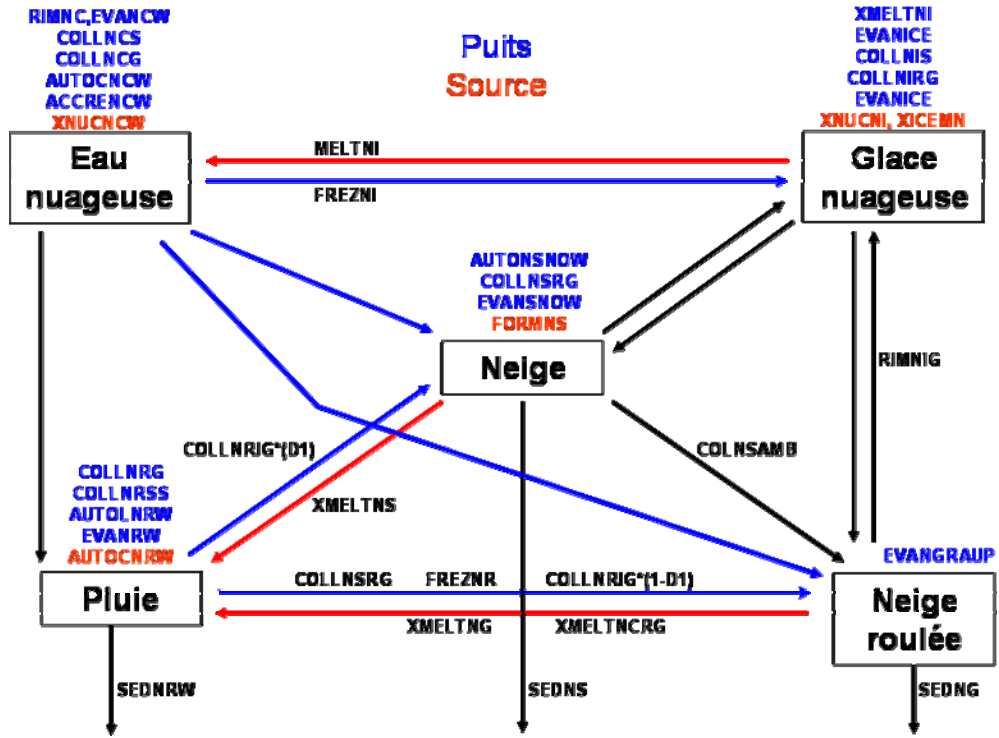


Figure 20 : Mécanismes microphysiques d'échanges pour les contenus en nombre

➤ Equations prédictives des rapports de mélange

$$\begin{aligned} \frac{dQ_v}{dt} = & \left( \frac{\partial Q_v}{\partial t} \right)_{nuc\_cloud} + \left( \frac{\partial Q_v}{\partial t} \right)_{dep\_vap\_cloud} + \left( \frac{\partial Q_v}{\partial t} \right)_{dep\_vap\_rain} + \left( \frac{\partial Q_v}{\partial t} \right)_{nuc\_ice} + \left( \frac{\partial Q_v}{\partial t} \right)_{dep\_vap\_ice} \\ & + \left( \frac{\partial Q_v}{\partial t} \right)_{dep\_vap\_snow} + \left( \frac{\partial Q_v}{\partial t} \right)_{dep\_vap\_graup} + \left( \frac{\partial Q_v}{\partial t} \right)_{evap\_melt\_snow} + \left( \frac{\partial Q_v}{\partial t} \right)_{evap\_melt\_graup} \\ \frac{dQ_v}{dt} = & -QCWNUC - CONDQCW - CONDQRW - XNUCQI - DEPVQI \\ & - DEPQSNOW - DEPQGRAUP + EVAPMQS + EVAPMQG \end{aligned} \quad (144)$$

$$\begin{aligned} \frac{dQ_c}{dt} = & \left( \frac{\partial Q_c}{\partial t} \right)_{nuc\_cloud} + \left( \frac{\partial Q_c}{\partial t} \right)_{dep\_vap\_cloud} + \left( \frac{\partial Q_c}{\partial t} \right)_{autoconv} + \left( \frac{\partial Q_c}{\partial t} \right)_{accretion} + \left( \frac{\partial Q_c}{\partial t} \right)_{freez\_cloud} \\ & + \left( \frac{\partial Q_c}{\partial t} \right)_{rim\_cloud\_ice} + \left( \frac{\partial Q_c}{\partial t} \right)_{coll\_cloud\_snow} + \left( \frac{\partial Q_c}{\partial t} \right)_{coll\_cloud\_graup} \\ \frac{dQ_c}{dt} = & QCWNUC + CONDQCW - AUTOCQRW - ACCREQRW - FREZQI \\ & - (RIMQI + RIMQG) - COLLQCS - COLLQCG \end{aligned} \quad (145)$$

$$\begin{aligned} \frac{dQ_i}{dt} = & \left( \frac{\partial Q_i}{\partial t} \right)_{nuc\_ice} + \left( \frac{\partial Q_i}{\partial t} \right)_{dep\_vap\_ice} + \left( \frac{\partial Q_i}{\partial t} \right)_{freez\_cloud} + \left( \frac{\partial Q_i}{\partial t} \right)_{rim\_cloud\_ice} + \left( \frac{\partial Q_i}{\partial t} \right)_{rim\_ice\_cloud} \\ & + \left( \frac{\partial Q_i}{\partial t} \right)_{form\_snow} + \left( \frac{\partial Q_i}{\partial t} \right)_{coll\_ice\_snow} + \left( \frac{\partial Q_i}{\partial t} \right)_{coll\_ice\_rain} + \left( \frac{\partial Q_i}{\partial t} \right)_{ice\_mult} \\ \frac{dQ_i}{dt} = & XNUCQI + DEPVQI + FREZQI + RIMQI - RIMQIG \end{aligned}$$

$$- \text{FORMQS} - \text{COLLQIS} - \text{COLLQIRG} + \text{XICEMQ} \quad (146)$$

$$\begin{aligned} \frac{dQr}{dt} = & \left( \frac{\partial Qr}{\partial t} \right)_{\text{dep\_vap\_rain}} + \left( \frac{\partial Qr}{\partial t} \right)_{\text{autoconv}} + \left( \frac{\partial Qr}{\partial t} \right)_{\text{accretion}} + \left( \frac{\partial Qr}{\partial t} \right)_{\text{freez\_rain}} + \left( \frac{\partial Qr}{\partial t} \right)_{\text{coll\_rain\_ice}} \\ & + \left( \frac{\partial Qr}{\partial t} \right)_{\text{coll\_rain\_snow}} + \left( \frac{\partial Qr}{\partial t} \right)_{\text{coll\_rain\_graup}} + \left( \frac{\partial Qr}{\partial t} \right)_{\text{melt\_snow}} + \left( \frac{\partial Qr}{\partial t} \right)_{\text{melt\_graup}} + \left( \frac{\partial Qr}{\partial t} \right)_{\text{melt\_cloud\_graup}} \\ & + \left( \frac{\partial Qr}{\partial t} \right)_{\text{melt\_rain\_graup}} + \left( \frac{\partial Qr}{\partial t} \right)_{\text{sed\_rain}} \\ \frac{dQr}{dt} = & \text{CONDQRW} + \text{AUTOCQRW} + \text{ACCREQRW} - \text{FREZQR} - \text{COLLQIRG} \\ & - \text{COLLQRS} - \text{COLLQRG} + \text{XMELTQS} + \text{XMELTQG} + \text{XMELTCG} \\ & + \text{XMELTCR} - \text{SEDQR} \end{aligned} \quad (147)$$

$$\begin{aligned} \frac{dQs}{dt} = & \left( \frac{\partial Qs}{\partial t} \right)_{\text{dep\_vap\_snow}} + \left( \frac{\partial Qs}{\partial t} \right)_{\text{form\_snow}} + \left( \frac{\partial Qs}{\partial t} \right)_{\text{coll\_cloud\_snow}} + \left( \frac{\partial Qs}{\partial t} \right)_{\text{coll\_rain\_snow}} + \left( \frac{\partial Qs}{\partial t} \right)_{\text{coll\_snow\_rain}} \\ & + \left( \frac{\partial Qs}{\partial t} \right)_{\text{coll\_ice\_snow}} + \left( \frac{\partial Qs}{\partial t} \right)_{\text{coll\_rain\_ice}} + \left( \frac{\partial Qs}{\partial t} \right)_{\text{coll\_ice\_rain}} + \left( \frac{\partial Qs}{\partial t} \right)_{\text{ice\_mult}} + \left( \frac{\partial Qs}{\partial t} \right)_{\text{melt\_snow}} \\ & + \left( \frac{\partial Qs}{\partial t} \right)_{\text{evap\_melt\_snow}} + \left( \frac{\partial Qs}{\partial t} \right)_{\text{sed\_snow}} \\ \frac{dQs}{dt} = & \text{DEPQSNOW} + \text{FORMQS} + \text{COLLQCSS} + \text{COLLQRSS} - \text{COLLQSRG} \\ & + \text{COLLQIS} + \text{D1 (COLLQIRG)} + \text{D1 (COLLQIRG)} - \text{XICEMQS} - \text{XMELTQS} \\ & - \text{EVAPMQS} - \text{SEDQS} \end{aligned} \quad (148)$$

$$\begin{aligned} \frac{dQg}{dt} = & \left( \frac{\partial Qg}{\partial t} \right)_{\text{dep\_vap\_graup}} + \left( \frac{\partial Qg}{\partial t} \right)_{\text{freez\_rain}} + \left( \frac{\partial Qg}{\partial t} \right)_{\text{rim\_cloud\_ice}} + \left( \frac{\partial Qg}{\partial t} \right)_{\text{rim\_ice\_cloud}} + \left( \frac{\partial Qg}{\partial t} \right)_{\text{coll\_cloud\_snow}} \\ & + \left( \frac{\partial Qg}{\partial t} \right)_{\text{coll\_rain\_ice}} + \left( \frac{\partial Qg}{\partial t} \right)_{\text{coll\_ice\_rain}} + \left( \frac{\partial Qg}{\partial t} \right)_{\text{coll\_cloud\_graup}} + \left( \frac{\partial Qg}{\partial t} \right)_{\text{coll\_rain\_graup}} + \left( \frac{\partial Qg}{\partial t} \right)_{\text{coll\_rain\_snow}} \\ & + \left( \frac{\partial Qg}{\partial t} \right)_{\text{coll\_snow\_rain}} + \left( \frac{\partial Qg}{\partial t} \right)_{\text{ice\_mult}} + \left( \frac{\partial Qg}{\partial t} \right)_{\text{melt\_graup}} + \left( \frac{\partial Qg}{\partial t} \right)_{\text{melt\_cloud\_graup}} + \left( \frac{\partial Qg}{\partial t} \right)_{\text{melt\_rain\_graup}} \\ & + \left( \frac{\partial Qg}{\partial t} \right)_{\text{evap\_melt\_graup}} + \left( \frac{\partial Qg}{\partial t} \right)_{\text{sed\_graup}} \\ \frac{dQg}{dt} = & \text{DEPQGRAUP} + \text{FREZQR} + \text{RIMQG} + \text{RIMQIG} + \text{COLLQCSG} \\ & + (1 - \text{D1}) \text{COLLQIRG} + (1 - \text{D1}) \text{COLLQIRG} + \text{COLLQCG} + \text{COLLQRG} + \text{COLLQRSG} \\ & + \text{COLLQSRG} - \text{XICEMQG} - \text{XMELTQG} - \text{XMELTRG} - \text{XMELTCG} \\ & - \text{EVAPMQG} - \text{SEDQG} \end{aligned} \quad (149)$$

➤ Equations prédictives des concentrations en nombre

$$\begin{aligned} \frac{dNc}{dt} &= \left( \frac{\partial Nc}{\partial t} \right)_{nuc\_cloud} + \left( \frac{\partial Nc}{\partial t} \right)_{autoconv} + \left( \frac{\partial Nc}{\partial t} \right)_{accretion} + \left( \frac{\partial Nc}{\partial t} \right)_{frez\_cloud} + \left( \frac{\partial Nc}{\partial t} \right)_{rim\_cloud\_ice} \\ &+ \left( \frac{\partial Nc}{\partial t} \right)_{coll\_cloud\_graup} + \left( \frac{\partial Nc}{\partial t} \right)_{coll\_cloud\_snow} + \left( \frac{\partial Nc}{\partial t} \right)_{evap\_cloud} \\ \frac{dNc}{dt} &= XNUCNCW - AUTOCNCW - ACCRENCW - FREZNI - RIMNC \\ &- COLLNCG - COLLNCS - EVANCW \end{aligned} \quad (150)$$

$$\begin{aligned} \frac{dNi}{dt} &= \left( \frac{\partial Ni}{\partial t} \right)_{nuc\_ice} + \left( \frac{\partial Ni}{\partial t} \right)_{frez\_cloud} + \left( \frac{\partial Ni}{\partial t} \right)_{rim\_ice\_cloud} + \left( \frac{\partial Ni}{\partial t} \right)_{form\_snow} + \left( \frac{\partial Ni}{\partial t} \right)_{autoagregation} \\ &+ \left( \frac{\partial Ni}{\partial t} \right)_{coll\_ice\_snow} + \left( \frac{\partial Ni}{\partial t} \right)_{coll\_ice\_rain} + \left( \frac{\partial Ni}{\partial t} \right)_{ice\_mult} + \left( \frac{\partial Ni}{\partial t} \right)_{evap\_ice} \\ \frac{dNi}{dt} &= XNUCNI + FREZNI - RIMNIG - FORMNICE \\ &- COLLNIS - COLLNIRG + XICEMN - EVANICE \end{aligned} \quad (151)$$

$$\begin{aligned} \frac{dNr}{dt} &= \left( \frac{\partial Nr}{\partial t} \right)_{autoconv} + \left( \frac{\partial Nr}{\partial t} \right)_{autocollec} + \left( \frac{\partial Nr}{\partial t} \right)_{frez\_rain} + \left( \frac{\partial Nr}{\partial t} \right)_{coll\_rain\_snow} + \left( \frac{\partial Nr}{\partial t} \right)_{coll\_rain\_graup} \\ &+ \left( \frac{\partial Nr}{\partial t} \right)_{coll\_rain\_ice} + \left( \frac{\partial Nr}{\partial t} \right)_{melt\_graup} + \left( \frac{\partial Nr}{\partial t} \right)_{melt\_snow} + \left( \frac{\partial Nr}{\partial t} \right)_{melt\_graup} + \left( \frac{\partial Nr}{\partial t} \right)_{evap\_rain} + \left( \frac{\partial Nr}{\partial t} \right)_{sed\_rain} \\ \frac{dNr}{dt} &= AUTOCNRW - AUTOLNRW - FREZNR - COLLNRS - COLLNRG \\ &- COLLNRIG + XMELTNG + XMELTNS + XMELTNCRG - EVANRW - SEDNR \end{aligned} \quad (152)$$

$$\begin{aligned} \frac{dNs}{dt} &= \left( \frac{\partial Ns}{\partial t} \right)_{form\_snow} + \left( \frac{\partial Ns}{\partial t} \right)_{coll\_snow\_rain} + \left( \frac{\partial Ns}{\partial t} \right)_{autocoll\_snow} + \left( \frac{\partial Ns}{\partial t} \right)_{coll\_cloud\_snow} + \left( \frac{\partial Ns}{\partial t} \right)_{coll\_rain\_ice} \\ &+ \left( \frac{\partial Ns}{\partial t} \right)_{melt\_snow} + \left( \frac{\partial Ns}{\partial t} \right)_{evap\_snow} + \left( \frac{\partial Ns}{\partial t} \right)_{sed\_snow} \\ \frac{dNs}{dt} &= FORMNS - COLLNSRG + AUTONSNOW - COLNSAMBG - D1 (COLLNRIG) \\ &- XMELTNS - EVANSNOW - SEDNS \end{aligned} \quad (153)$$

$$\begin{aligned} \frac{dNg}{dt} &= \left( \frac{\partial Ng}{\partial t} \right)_{frez\_rain} + \left( \frac{\partial Ng}{\partial t} \right)_{rim\_ice\_cloud} + \left( \frac{\partial Ng}{\partial t} \right)_{coll\_snow\_rain} + \left( \frac{\partial Ng}{\partial t} \right)_{coll\_rain\_ice} + \left( \frac{\partial Ng}{\partial t} \right)_{coll\_cloud\_snow} \\ &+ \left( \frac{\partial Ng}{\partial t} \right)_{melt\_graup} + \left( \frac{\partial Ng}{\partial t} \right)_{melt\_graup} + \left( \frac{\partial Ng}{\partial t} \right)_{evap\_graup} + \left( \frac{\partial Ng}{\partial t} \right)_{sed\_graup} \\ \frac{dNg}{dt} &= FREZNR + RIMNIG + COLLNSRG + (1 - D1)COLLNRIG + COLNSAMBG \\ &- XMELTNG - XMELTNCRG - EVANGRAUP - SEDNG \end{aligned} \quad (154)$$



## 2. La chimie multiphase dans M2C2

### 2.1. Chimie multiphase associée à la microphysique chaude

#### 2.1.1. Description de la version nuage chaud

Le modèle de chimie multiphase a été développé sur la base du modèle de chimie atmosphérique de Madronich et Calvert (1990) qui inclut un mécanisme chimique en phase gazeuse explicite adaptable à n'importe quel milieu environnemental. Les échanges entre les phases gazeuse et aqueuse sont paramétrés à l'aide de la formulation de la cinétique du transfert de masse de Schwartz (1986) (cf. chapitre I, 2.1.2) et le mécanisme réactionnel explicite en phase aqueuse comprend actuellement la chimie des  $\text{HO}_x$ , des  $\text{NO}_y$ , du soufre, des COVs à un atome de carbone, du chlore, de l'ammoniaque, des métaux de transition et de l'oxalate et est toujours en cours de développement (Leriche et al., 2003 ; 2007 ; Deguillaume et al., 2004). En parallèle au module de chimie multiphase, le modèle de transfert radiatif TUV4 (Madronich et Flocke, 1999) adapté à la phase aqueuse, permet de calculer les coefficients de photolyse variable en phase gazeuse et aqueuse

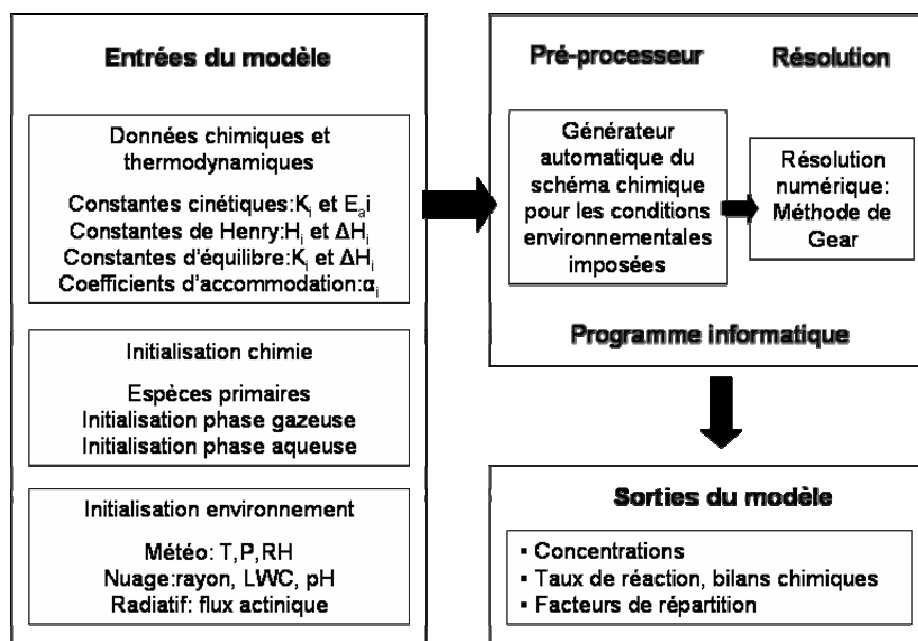


Figure 21 : Organigramme du code de chimie multiphase de M2C2.

La figure (21) ci-dessus décrit la structure du code de chimie multiphase dans sa version nuage chaud qui comprend une phase pré-processeur et une phase résolution. Cette organisation offre la possibilité :

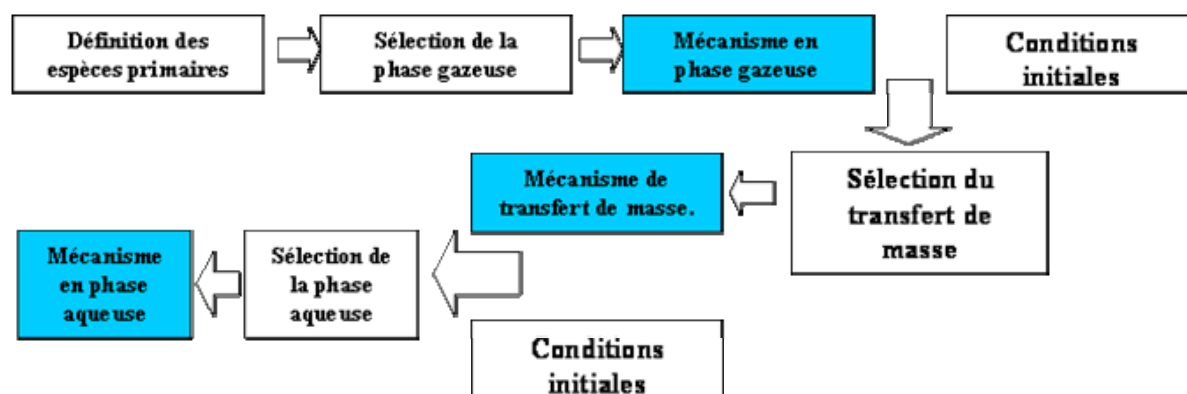
- De sélectionner un mécanisme chimique multiphase en fonction d'un milieu environnemental choisi à partir des mécanismes chimiques complets en phase gazeuse et aqueuse.
- De modifier les mécanismes chimiques (mises à jour des constantes de réaction, des données thermodynamiques, etc.) et les conditions initiales (chimiques et environnementales) indépendamment de la partie résolution
- D'effectuer des tests de sensibilité afin d'évaluer l'importance d'un processus. Par exemple le code offre la possibilité de faire des simulations en ciel clair ou en présence de nuages.

La partie résolution du modèle contient le programme qui effectue la simulation. Il résout le système d'équations différentielles et fournit en sortie l'évolution temporelle des concentrations, des taux de réactions et des facteurs de répartition. Le pH est calculé par le modèle à chaque pas de temps par la résolution de l'équation d'électroneutralité si la valeur imposée dans le fichier d'entrée est nulle, sinon il est constant et égal à la valeur imposée en condition initiale.

### 2.1.2. Validation du code de chimie multiphase dans la version nuage chaud

Afin de valider le module de chimie multiphase de M2C2, nous avons reproduit l'exercice d'intercomparaison de modèles décrit dans Barth et al. (2003). Cet exercice avait pour but d'intercomparer plusieurs modèles de boîte de chimie atmosphérique nuageuse utilisés par la communauté scientifique couplant chimie en phase aqueuse et gazeuse et incluant la photochimie. Le protocole de simulation se focalise sur la concentration de l'ozone, OH, HCOOH, HO<sub>2</sub>, CH<sub>3</sub>OO, CH<sub>2</sub>O, CH<sub>3</sub>OOH, HNO<sub>3</sub>, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, N<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, sans chimie du soufre et sans chimie des métaux de transition. La première partie de l'exercice d'intercomparaison consiste à simuler la chimie en phase gazeuse uniquement, alors que la seconde partie prend en compte la phase aqueuse par la simulation d'un nuage de type stratus. Mon travail a consisté à introduire la simulation du modèle M2C2 dans l'intercomparaison afin d'évaluer le traitement numérique utilisé dans M2C2.

La figure 22 présente un schéma simplifié montrant le fonctionnement du pré-processeur du module de chimie multiphase de M2C2. La connaissance des espèces présentes dans la phase gazeuse permet de sélectionner, dans le mécanisme complet en phase gazeuse, les voies réactionnelles qui sont adaptées aux conditions que l'on impose (milieu urbain pollué, maritime ou rural...). Celles-ci constituent le mécanisme en phase gazeuse. A l'aide des conditions initiales, le mécanisme de transfert est élaboré. Les conditions initiales en phase aqueuse et le mécanisme de transfert servent alors de données d'entrée au programme de sélection du mécanisme en phase aqueuse. Nous avons alors les mécanismes réactionnels en phase gazeuse et aqueuse ainsi que le mécanisme de transfert applicable à la simulation que l'on désire effectuer.



**Figure 22 : Méthode d'établissement du schéma chimique de M2C2.**

L'objectif était d'évaluer la validité du traitement numérique de M2C2 en utilisant le même schéma chimique que dans l'intercomparaison. Pour cela nous avons suivi le protocole présenté par Barth et al. (2003). Des simulations ont été effectuées à l'aide du modèle M2C2 dans sa version sans microphysique avec un flux actinique constant. Nos résultats ont été confrontés à ceux présentés dans Barth et al. (2003).

Les simulations utilisent donc les conditions environnementales, les concentrations initiales et les valeurs des constantes de réaction en phase gazeuse présentées dans Barth et al. (2003). La simulation avec phase aqueuse utilise en plus les valeurs des constantes de réaction en phase aqueuse, les coefficients d'accommodation et les constantes de Henry présentés dans Barth et al. (2003).

Les conditions environnementales décrivent un cas idéalisé d'un brouillard simplifié dans un milieu continental rural sous les moyennes latitudes à 1500 m d'altitude, dans la troposphère libre avec un rayon des gouttelettes constant.

Dans ce cadre, le protocole décrit dans Barth et al. (2003), utilise deux types de simulations d'une durée de deux heures : la première sans nuage, et la deuxième avec nuage. Le second cas se déroule en trois phases:

- Une première phase de 30 minutes de simulation sans phase aqueuse 'ciel clair'.
- Une seconde phase d'une heure avec phase aqueuse (gouttelettes de rayon 10  $\mu\text{m}$  et contenu en eau liquide de 0.3  $\text{g/m}^3$ ).
- Une troisième phase de 30 minutes à nouveau en 'ciel clair'.

Le flux actinique utilisé est le maximum possible : il est calculé sur le 45<sup>ème</sup> parallèle, au solstice d'été à 12h avec une température de 285K.

Nous ne présentons rapidement ici que les évolutions comparées des concentrations en ozone et  $\text{NO}_x$ , bien que toutes les espèces présentées dans Barth et al. (2003) aient été comparées aux résultats obtenus avec M2C2.

#### a) Cas sans nuage

Le contenu en eau liquide est maintenu nul durant ces simulations, seule la réactivité en phase gazeuse est considérée. Ces simulations permettent donc de comparer le solveur chimique en phase gazeuse de M2C2 avec celui des différents modèles présentés dans Barth et al. (2003).

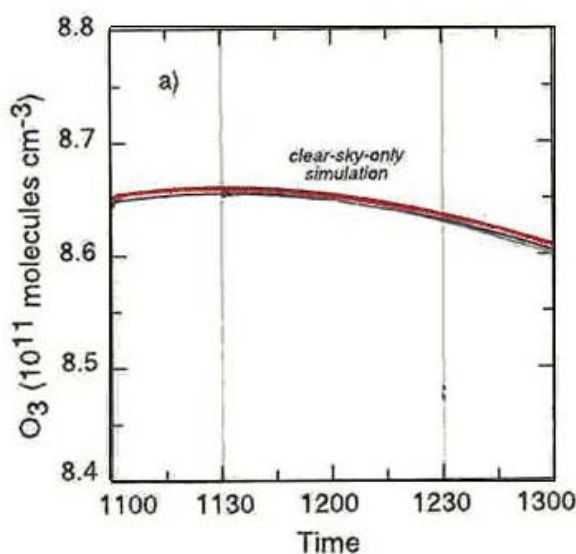
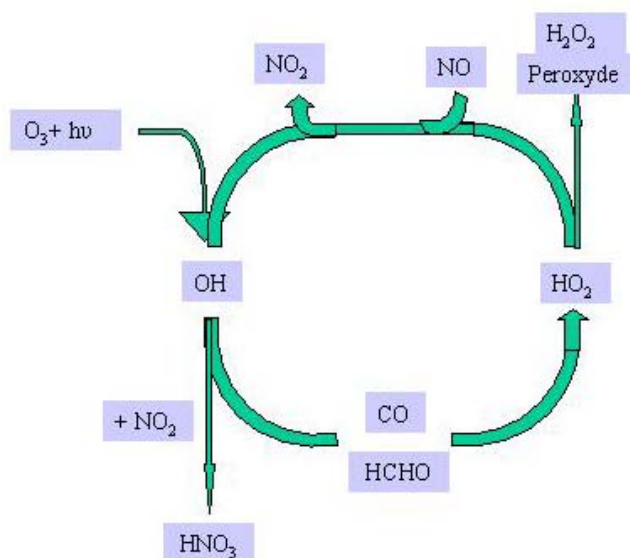


Figure 23 : Concentration en ozone : M2C2 et Barth et al., 2003.

Pour l'ozone (figure (23)), l'évolution de la concentration simulée par M2C2 (en rouge) est parfaitement similaire à celle simulée dans Barth et al. (2003) (en noir), avec une légère augmentation de 11h à 11h 30 (max : 8.66  $10^{11}$  molécules/cm<sup>3</sup>), suivit d'une diminution de 11h 30 à 13h (min : 8.60  $10^{11}$  molécules/cm<sup>3</sup>). Les conditions de simulation (concentrations initiales des espèces chimiques en phase gazeuse) correspondent au régime 2 décrit par Buisson, (1999, figure (24)), régime dans lequel il y a production photochimique d'ozone. En effet les 30 premières minutes de simulation montrent une formation d'ozone.

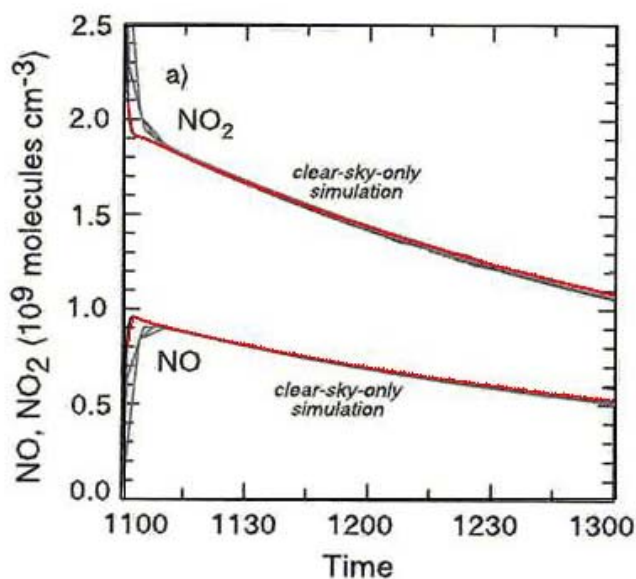
Régime 2: Concentration de  $\text{NO}_x$  faible (quelques dizaines de pptv à quelques ppbv)

$\text{O}_3$  quelques dizaines de ppbv



**Figure 24: Bilan des radicaux  $\text{OH}$  et  $\text{HO}_2$  en zone rurale, d'après Buisson (1999).**

Cependant, les concentrations de  $\text{NO}_2$  et de  $\text{NO}$  (figure (25)) montrent une diminution (M2C2 en rouge, Barth et al. (2003) en noir), due à la formation d'acide nitrique  $\text{HNO}_3$  à partir du radical hydroxyle  $\text{OH}$  et du dioxyde d'azote, lui-même en équilibre avec le monoxyde d'azote. De plus aucune émission de  $\text{NO}$ , qui permettrait aux concentrations des  $\text{NO}_x$  de se maintenir, n'est simulée ici. On observe une concordance parfaite entre les simulations de l'intercomparaison de Barth et al. (2003), et celle de M2C2. La concentration en  $\text{NO}_x$  est caractéristique du régime continental peu pollué décrit par Buisson (1999) dans la figure (24). Ce régime a pour particularité de provoquer la destruction photochimique de l'ozone troposphérique, ce que nous observons sur la figure (23) dès 13h 45.



**Figure 25 : Concentration en  $\text{NO}_x$  ( $\text{NO}$ ,  $\text{NO}_2$ ) : M2C2 et Barth et al., 2003.**

### b) Cas avec nuage

Le contenu en eau liquide est porté à  $0.3 \text{ g/m}^3$  de 11h30 à 12h30 sous forme de gouttelettes de  $10 \text{ }\mu\text{m}$  de rayon.

Les graphiques suivants présentent la concentration totale de chaque espèce chimique, i.e la somme des concentrations des deux phases de l'espèce chimique considérée :

$$C (\text{molécules/cm}^3) = C(\text{phase gazeuse}) + C(\text{phase aqueuse})$$

Sur la figure (26) et la figure (27), on observe l'évolution de la concentration en ozone et de la concentration des  $\text{NO}_x$  avec la phase aqueuse activée.

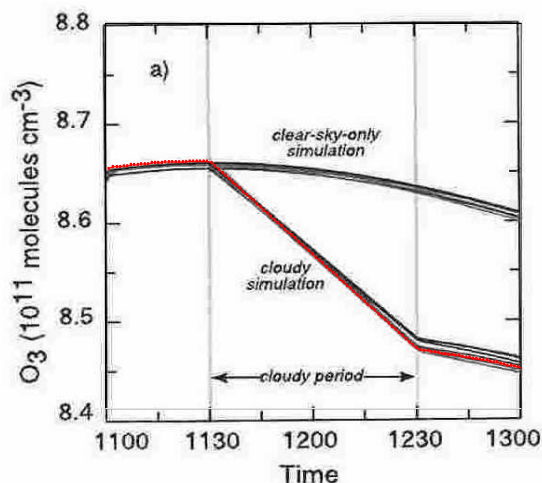


Figure 26: Ozone total, M2C2 et Barth et al., 2003.

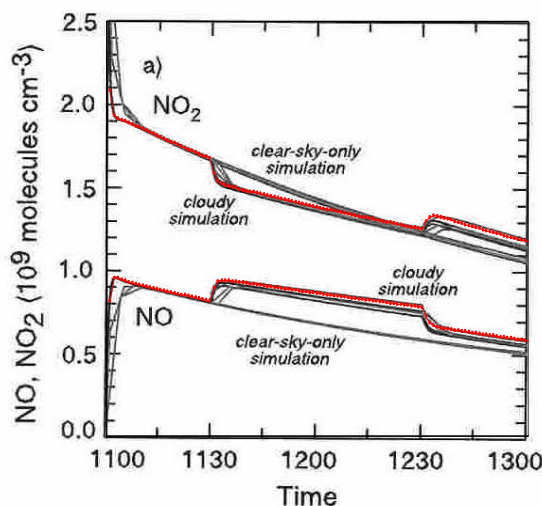


Figure 27:  $\text{NO}_x$  ( $\text{NO}$ ,  $\text{NO}_2$ ) total, M2C2 et Barth et al., 2003.

A nouveau les résultats obtenus avec M2C2 (courbes rouges) sont en bon accord avec ceux de Barth et al. (2003) (courbes noires).

Finalement, les simulations effectuées avec le modèle M2C2 en suivant le protocole décrit dans Barth et al. (2003) se comparent favorablement pour les simulations avec et sans phase aqueuse, ce qui permet de valider le traitement numérique avec la méthode de Gear utilisé dans M2C2.

## 2.2. Chimie multiphase associée à présence de la phase glace

### 2.2.1. Coefficients de rétention dans M2C2

Comme on l'a vu au chapitre I, lorsque des gouttelettes nuageuses ou des gouttes de pluie congèlent, les espèces chimiques contenues en elles peuvent soit rester dans la glace qui se forme, soit faire l'objet d'un dégazage et retourner dans la phase gazeuse atmosphérique. Un coefficient, appelé coefficient de rétention, permet de prendre en compte ce mécanisme. Il se définit comme la fraction de gaz soluble retenue dans la glace durant la congélation d'un hydrométéore liquide. Par définition le coefficient de rétention est toujours compris entre zéro et un.

Dans M2C2 nous avons utilisé les coefficients de rétention disponibles dans la littérature (cf. chapitre I, 2.2.1) dont certains sont fonction de la température alors que d'autres sont constants. On remarquera que les coefficients de rétention sont très variables en fonction de l'espèce chimique considérée, allant de un pour l'acide chlorhydrique et l'acide nitrique, pour lesquels l'intégralité du gaz dissout reste dans la phase glacée lors de la congélation, en passant par 0,5 pour le peroxyde d'hydrogène. Les valeurs utilisées dans M2C2 sont données dans le tableau 5. Pour les espèces chimiques pour lesquelles aucune donnée expérimentale n'existe, nous avons décidé d'appliquer la relation de Lamb et Blumenstein (1987) qui permet de représenter la dépendance à la température des coefficients de rétention.

Pour l'acide sulfurique, le coefficient de rétention n'est pas documenté dans la littérature et le coefficient proposé par Lamb et Blumenstein (1987) a été utilisé dans M2C2. Cependant, un coefficient de rétention proche de 1 pour cette espèce semble plus réaliste, reposant sur le raisonnement présenté par Iribarne et Pyshnov (1990) développé en 2.2.1, chapitre I pour les acides forts nitriques et chlorhydriques

**Tableau 5 : Coefficients de rétention tel que  $RET=a+b(T_0-T)$  avec  $T_0=273\text{ K}$**

Espèce chimique	Coefficient a	Coefficient b	Références
CH <sub>3</sub> (OO)	0,012	0,0058	Lamb et Blumenstein, 1987
CH <sub>2</sub> (OH)(OO)	0.012	0.0058	Lamb et Blumenstein, 1987
CH <sub>2</sub> O	0.020	0	Mari et al, 2000
CO <sub>2</sub>	0.012	0.0058	Lamb et Blumenstein, 1987
H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	0.5	0	Snider et al., 1992
HCl	1	0	Iribarne et Pyshnov, 1990
HNO <sub>2</sub>	0.012	0.0058	Lamb et Blumenstein, 1987
HNO <sub>3</sub>	1	0	Iribarne et Pyshnov, 1990
HNO <sub>4</sub>	0.012	0.0058	Lamb et Blumenstein, 1987
HO	0.012	0.0058	Lamb et Blumenstein, 1987
HO <sub>2</sub>	0.012	0.0058	Lamb et Blumenstein, 1987
N <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.012	0.0058	Lamb et Blumenstein, 1987
NO	0.012	0.0058	Lamb et Blumenstein, 1987
NO <sub>2</sub>	0.012	0.0058	Lamb et Blumenstein, 1987
NO <sub>3</sub>	0.012	0.0058	Lamb et Blumenstein, 1987
O <sub>2</sub>	0.012	0.0058	Lamb et Blumenstein, 1987
O <sub>3</sub>	0.012	0.0058	Lamb et Blumenstein, 1987
SO <sub>2</sub>	0.02	0	Voisin et al., 2000
CHO(OH)	0.012	0.0058	Lamb et Blumenstein, 1987
CH <sub>3</sub> (OOH)	0.02	0	Mari et al, 2000
CH <sub>2</sub> (OOH)(OH)	0.012	0.0058	Lamb et Blumenstein, 1987
CH <sub>3</sub> (ONO <sub>2</sub> )	0.012	0.0058	Lamb et Blumenstein, 1987

CH <sub>3</sub> (O <sub>2</sub> NO <sub>2</sub> )	0.012	0.0058	Lamb et Blumenstein, 1987
CH <sub>3</sub> (OH)	0.012	0.0058	Lamb et Blumenstein, 1987
CH <sub>2</sub> (OH)(OH)	0.012	0.0058	Lamb et Blumenstein, 1987
H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	0.012	0.0058	Lamb et Blumenstein, 1987
	1	0	Iribarne et Pyshnov, 1990

Comme détaillé par la suite dans la présentation du couplage chimie/microphysique, les coefficients de rétention vont apparaître devant chaque terme de congélation et de givrage dans la redistribution des espèces chimiques par les processus microphysiques. Ainsi la prise en compte de la congélation et du givrage dans l'évolution des concentrations est donnée par :

$$\left(\frac{\partial C_g}{\partial t}\right)_{\text{freez\_rim}} = -\frac{(1-RET)C_{liq}}{Q_{liq}} \left(\frac{\partial Q_{liq}}{\partial t}\right)_{\text{freez\_rim}} \quad (155)$$

$$\left(\frac{\partial C_{liq}}{\partial t}\right)_{\text{freez\_rim}} = \frac{C_{liq}}{Q_{liq}} \left(\frac{\partial Q_{liq}}{\partial t}\right)_{\text{freez\_rim}} \quad (156)$$

$$\left(\frac{\partial C_{glace\_p}}{\partial t}\right)_{\text{freez\_rim}} = \frac{(RET)C_{liq}}{Q_{liq}} \left(\frac{\partial Q_{glace\_p}}{\partial t}\right)_{\text{freez\_rim}} \quad (157)$$

où :

$C_g$  est la concentration du gaz,  $C_{liq}$  est la concentration dans l'eau nuageuse ou la pluie et  $C_{glace\_p}$  est la concentration dans la neige ou la neige roulée (molec/cm<sup>3</sup> d'air),

RET est le coefficient de rétention,

$Q_{liq}$  est le rapport de mélange en eau nuageuse ou en pluie et  $Q_{glace\_p}$  le rapport de mélange de la neige ou de la neige roulée (vol/vol),

Remarquons que la tendance  $\left(\frac{\partial Q_{liq}}{\partial t}\right)_{\text{freez\_rim}}$  est négative (cf. équations (145) et (147)). De

plus, comme certains processus de givrage entraînent la formation de neige et de neige roulée (par exemple, le givrage de l'eau nuageuse sur la neige), c'est la tendance du rapport de mélange de l'hydrométéore glacé précipitant qui apparaît dans l'équation (157).

Étant donné le manque de données sur les valeurs des coefficients de rétention, des tests de sensibilité seront effectués sur leurs valeurs la plupart du temps estimées dans M2C2.

### 2.2.2. Prise en compte de la capture des espèces chimiques durant le dépôt de vapeur

Lors du dépôt de vapeur sur les hydrométéores en phase glacée, une partie des gaz traces se dépose simultanément et se retrouve piégée dans le cristal en train de croître. Ce mécanisme est connu sous le nom de 'burial', qui signifie littéralement 'enfouissement' des gaz déposés à la surface de l'hydrométéore glacé sous les couches de glace se déposant par la suite (cf. chapitre I, 2.2.2). Le coefficient 'burial' vaut 1 si l'espèce gazeuse considérée se dépose sur les cristaux de glace et se retrouve capturé proportionnellement à sa concentration dans l'air, et 0 si l'espèce chimique n'est pas capturée.

Dans M2C2, l'évolution de la concentration dans les hydrométéores glacés et celle de la phase gazeuse due au dépôt de vapeur quand le dépôt de vapeur sur la glace est positif s'écrivent :

$$\left(\frac{\partial C_g}{\partial t}\right)_{\text{dep}} = \frac{\beta C_g}{Q_v} \left(\frac{\partial Q_v}{\partial t}\right)_{\text{dep\_vap\_glace}} = -\left(\frac{\partial C_{glace}}{\partial t}\right)_{\text{dep}} \quad (158)$$

Où :

$C_g$  est la concentration du gaz et  $C_{glace}$  est la concentration de l'espèce chimique considérée dans la glace nuageuse, la neige ou la neige roulée,

$\beta$  est le coefficient de burial,

$Q_v$  est le rapport de mélange en vapeur d'eau en vol/vol,

l'indice 'dep\_vap\_glace' désigne le dépôt de vapeur sur la glace nuageuse, la neige ou la neige roulée.

C'est un terme source pour les hydrométéores glacés, puits pour la phase gazeuse. Cette équation est valide pour le dépôt de vapeur sur la glace nuageuse, la neige et la neige roulée.

Lors des phases d'évaporation c'est-à-dire quand le dépôt de vapeur sur la glace est négatif, le relargage des espèces chimiques dans l'air est proportionnel à leur concentration dans l'hydrométéore glacé et à l'évaporation :

$$\left( \frac{\partial C_{glace}}{\partial t} \right)_{vap} = \frac{C_{glace}}{Q_{glace}} \left( \frac{\partial Q_{glace}}{\partial t} \right)_{dep\_vap\_glace} = - \left( \frac{\partial C_g}{\partial t} \right)_{vap} \quad (159)$$

C'est un terme puits pour les hydrométéores glacés (glace nuageuse, neige et neige roulée) et source pour la phase gazeuse.

### 2.2.3. Couplage chimie/microphysique dans les nuages mixtes

Le couplage entre la chimie et la microphysique implique la prise en compte des deux catégories d'eau liquide et des trois catégories d'eau glacée dans le module de chimie. L'évolution de la concentration des espèces chimiques dans la phase gazeuse, l'eau nuageuse, l'eau de pluie, la glace nuageuse, la neige et la neige roulée s'écrivent alors :

$$\frac{dC_g}{dt} = P_g - D_g C_g - Q_c k_{tc} C_g + \frac{k_{tc}}{H_{eff} RT} C_c - Q_r k_{tr} C_g + \frac{k_{tr}}{H_{eff} RT} C_r + \left( \frac{\partial C_g}{\partial t} \right)_{mic} \quad (160)$$

$$\frac{dC_c}{dt} = P_c - D_c C_c + Q_c k_{tc} C_g - \frac{k_{tc}}{H_{eff} RT} C_c + \left( \frac{\partial C_c}{\partial t} \right)_{mic} \quad (161)$$

$$\frac{dC_r}{dt} = P_r - D_r C_r + Q_r k_{tr} C_g - \frac{k_{tr}}{H_{eff} RT} C_r + \left( \frac{\partial C_r}{\partial t} \right)_{mic} \quad (162)$$

$$\frac{dC_i}{dt} = \left( \frac{\partial C_i}{\partial t} \right)_{mic} \quad (163)$$

$$\frac{dC_s}{dt} = \left( \frac{\partial C_s}{\partial t} \right)_{mic} \quad (164)$$

$$\frac{dC_{gp}}{dt} = \left( \frac{\partial C_{gp}}{\partial t} \right)_{mic} \quad (165)$$

où :

$C_g, C_c, C_r, C_i, C_s, C_{gp}$  sont les concentrations chimiques respectivement en phase gazeuse, dans l'eau nuageuse, dans l'eau précipitante, dans la glace nuageuse, dans la neige et dans la neige roulée ( $\text{molec cm}^{-3}$ ) ;

$P_g, P_c, P_r, D_g, D_c, D_r$  sont respectivement les taux de production chimique ( $\text{molec cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$ ) et de destruction chimique ( $\text{s}^{-1}$ ) pour la phase gazeuse et aqueuse ;

$Q_c, Q_r, Q_i, Q_s, Q_g$  sont les rapports de mélange en eau nuageuse, en eau de pluie, en glace nuageuse, en neige et en neige roulée (vol/vol) ;

$k_{tc}, k_{tr}$  sont les constantes de transfert de masse (Schwartz, 1986) pour l'eau nuageuse et l'eau de pluie ( $\text{s}^{-1}$ ) ;

$H_{eff}$  est la constante de Henry effective ( $\text{M atm}^{-1}$ ) ;

$T$  est la température (K) ;

$R$  est la constante des gaz parfaits ( $=0,08206 \text{ atm M}^{-1} \text{ K}^{-1}$ ).



Etant donnée la connaissance lacunaire de la chimie de la glace, aucune réactivité chimique n'est associée aux hydrométéores glacés dans M2C2 actuellement, d'où la forme simple des équations (163), (164) et (165). Pour les raisons évoquées au chapitre I, l'adsorption à la surface des hydrométéores glacés n'est pas considérée, M2C2 étant développé dans le but de modéliser des nuages mixtes. Ce processus devrait être ajouté dans le cas de nuage type cirrus composé uniquement de cristaux de glace. Les seuls processus pouvant modifier la concentration des espèces chimiques au sein des hydrométéores glacés dans M2C2 sont donc les processus microphysiques permettant la redistribution des espèces chimiques entre les différentes phases : gazeuse, aqueuse et glacée. Ces termes vont maintenant être détaillés pour les processus liés à la présence de glace, les termes liés à la microphysique chaude sont explicités dans Leriche et al. (2001 ; 2007).

- **Concentrations en phase gazeuse :**

Pour les concentrations en phase gazeuse, l'évolution due aux processus microphysiques est donnée par :

$$\begin{aligned} \left( \frac{\partial C_g}{\partial t} \right)_{mic} = & \left( \frac{\partial C_g}{\partial t} \right)_{dep\_vap\_ice} + \left( \frac{\partial C_g}{\partial t} \right)_{dep\_vap\_snow} + \left( \frac{\partial C_g}{\partial t} \right)_{dep\_vap\_graup} + \left( \frac{\partial C_g}{\partial t} \right)_{freez\_cloud} \\ & + \left( \frac{\partial C_g}{\partial t} \right)_{freez\_rain} + \left( \frac{\partial C_g}{\partial t} \right)_{rim\_cloud\_ice} + \left( \frac{\partial C_g}{\partial t} \right)_{coll\_rain\_ice} + \left( \frac{\partial C_g}{\partial t} \right)_{coll\_cloud\_graup} \\ & + \left( \frac{\partial C_g}{\partial t} \right)_{coll\_rain\_graup} + \left( \frac{\partial C_g}{\partial t} \right)_{coll\_cloud\_snow} + \left( \frac{\partial C_g}{\partial t} \right)_{coll\_rain\_snow} + \left( \frac{\partial C_g}{\partial t} \right)_{evap\_melt\_snow} \\ & + \left( \frac{\partial C_g}{\partial t} \right)_{evap\_melt\_graup} \end{aligned} \quad (166)$$

Les termes liés au dépôt de vapeur sont décrits par l'équation (158) quand le dépôt de vapeur sur la glace est positif et par l'équation (159) en phase d'évaporation.

Les deux termes de congélation ('freez\_cloud' et 'freez\_rain') ainsi que les 6 termes de givrage ('rim\_cloud\_ice', 'coll\_rain\_ice', 'coll\_cloud\_graup', 'coll\_rain\_graup', 'coll\_cloud\_snow', 'coll\_rain\_snow') sont donnés par l'équation (155).

Les deux derniers termes correspondant à l'évaporation de la neige et de la neige roulée en cours de fonte s'écrivent :

$$\left( \frac{\partial C_g}{\partial t} \right)_{evap\_melt} = - \frac{C_{glace\_p}}{Q_{glace\_p}} \left( \frac{\partial Q_{glace\_p}}{\partial t} \right)_{evap\_melt} = - \left( \frac{\partial C_{glace\_p}}{\partial t} \right)_{evap\_melt} \quad (167)$$

où  $C_{glace\_p}$  est la concentration dans la neige ou la neige roulée (molec/cm<sup>3</sup>) et  $Q_{glace\_p}$  est le rapport de mélange de la neige ou de la neige roulée (vol/vol).

Remarquons que lors de l'évaporation totale de l'eau nuageuse et de la pluie, les espèces chimiques ionisées sont considérées comme condensant sur la particule d'aérosol résultante tandis que les autres sont transférées en phase gazeuse.

- **Concentrations dans l'eau nuageuse :**

L'évolution des concentrations dans l'eau nuageuse par les processus microphysiques est donnée par :

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial C_c}{\partial t}\right)_{mic} = & \left(\frac{\partial C_c}{\partial t}\right)_{nuc\_cloud} + \left(\frac{\partial C_c}{\partial t}\right)_{autoconv} + \left(\frac{\partial C_c}{\partial t}\right)_{accretion} + \left(\frac{\partial C_c}{\partial t}\right)_{freez\_cloud} \\ & + \left(\frac{\partial C_c}{\partial t}\right)_{rim\_cloud\_ice} + \left(\frac{\partial C_c}{\partial t}\right)_{coll\_cloud\_snow} + \left(\frac{\partial C_c}{\partial t}\right)_{coll\_cloud\_graup} \end{aligned} \quad (168)$$

Les termes de congélation ('freez\_cloud') et de givrage ('rim\_cloud\_ice', 'coll\_cloud\_snow', 'coll\_cloud\_graup') sont donnés par l'équation (156).

- **Concentrations dans la pluie**

Pour la pluie, l'évolution des concentrations est donnée par :

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial C_r}{\partial t}\right)_{mic} = & \left(\frac{\partial C_r}{\partial t}\right)_{autoconv} + \left(\frac{\partial C_r}{\partial t}\right)_{accretion} + \left(\frac{\partial C_r}{\partial t}\right)_{freez\_rain} + \left(\frac{\partial C_r}{\partial t}\right)_{coll\_rain\_ice} \\ & + \left(\frac{\partial C_r}{\partial t}\right)_{coll\_rain\_snow} + \left(\frac{\partial C_r}{\partial t}\right)_{coll\_rain\_graup} + \left(\frac{\partial C_r}{\partial t}\right)_{melt\_snow} + \left(\frac{\partial C_r}{\partial t}\right)_{melt\_graup} \\ & + \left(\frac{\partial C_r}{\partial t}\right)_{melt\_cloud\_graup} + \left(\frac{\partial C_r}{\partial t}\right)_{melt\_rain\_graup} + \left(\frac{\partial C_r}{\partial t}\right)_{sed\_rain} \end{aligned} \quad (169)$$

A nouveau, les termes de congélation ('freez\_rain') et de givrage ('coll\_rain\_ice', 'coll\_rain\_snow', 'coll\_rain\_graup') sont donnés par l'équation (156).

Les deux termes de fonte de la neige et de la neige roulée ('melt\_snow', 'melt\_graup') sont donnés par :

$$\left(\frac{\partial C_r}{\partial t}\right)_{melt} = -\frac{C_{glace\_p}}{Q_{glace\_p}} \left(\frac{\partial Q_{glace\_p}}{\partial t}\right)_{melt} = -\left(\frac{\partial C_{glace\_p}}{\partial t}\right)_{melt} \quad (170)$$

Les termes de fonte de la neige et de la neige roulée entraînée par collision/coalescence avec des gouttelettes de nuage ou des gouttes de pluie à température positive ('melt\_cloud\_graup', 'melt\_rain\_graup') sont donnés par :

$$\left(\frac{\partial C_r}{\partial t}\right)_{melt\_liq\_graup} = -\frac{C_{glace\_p}}{Q_{glace\_p}} \left(\frac{\partial Q_{glace\_p}}{\partial t}\right)_{melt\_liq\_graup} = -\left(\frac{\partial C_{glace\_p}}{\partial t}\right)_{melt\_liq\_graup} \quad (171)$$

Finalement le terme de sédimentation qui est un puits net pour la parcelle d'air est donné par :

$$\left(\frac{\partial C_r}{\partial t}\right)_{sed\_rain} = \frac{C_r}{Q_r} \left(\frac{\partial Q_r}{\partial t}\right)_{sed\_rain} \quad (172)$$

- **Concentrations dans la glace nuageuse :**

L'évolution des concentrations dans la glace nuageuse par les processus microphysiques est donnée par :

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial C_i}{\partial t}\right)_{mic} = & \left(\frac{\partial C_i}{\partial t}\right)_{dep\_vap\_ice} + \left(\frac{\partial C_i}{\partial t}\right)_{freez\_cloud} + \left(\frac{\partial C_i}{\partial t}\right)_{rim\_cloud\_ice} + \left(\frac{\partial C_i}{\partial t}\right)_{rim\_ice\_cloud} \\ & + \left(\frac{\partial C_i}{\partial t}\right)_{form\_snow} + \left(\frac{\partial C_i}{\partial t}\right)_{coll\_ice\_snow} + \left(\frac{\partial C_i}{\partial t}\right)_{coll\_ice\_rain} + \left(\frac{\partial C_i}{\partial t}\right)_{ice\_mult} \end{aligned} \quad (173)$$

Le terme de dépôt de vapeur est décrit par l'équation (158) quand le dépôt de vapeur sur la glace est positif et par l'équation (159) en phase d'évaporation.

Le terme de congélation ('freez\_cloud') et le terme de givrage ('rim\_cloud\_ice') sont donnés par l'équation (157).

Le terme 'rim\_ice\_cloud' qui correspond au transfert de glace nuageuse formé par givrage de l'eau nuageuse dans la catégorie de la neige roulée est donné par :

$$\left(\frac{\partial C_i}{\partial t}\right)_{rim\_ice\_cloud} = \frac{C_i}{Q_i} \left(\frac{\partial Q_i}{\partial t}\right)_{rim\_ice\_cloud} = -\left(\frac{\partial C_{gp}}{\partial t}\right)_{rim\_ice\_cloud} \quad (174)$$

De façon similaire, le terme ‘form\_snow’ correspondant au transfert de la glace nuageuse dans la catégorie de la neige par divers processus microphysiques (cf. 1.4.6.1), le terme ‘coll\_ice\_snow’ de collision/coalescence de la glace nuageuse avec la neige et le terme ‘coll\_ice\_rain’ correspondant au transfert de la glace nuageuse dans la catégorie de la neige et de la neige roulée dû au givrage de la pluie sur la glace nuageuse sont donnés par :

$$\left(\frac{\partial C_i}{\partial t}\right)_{form\_snow} = \frac{C_i}{Q_i} \left(\frac{\partial Q_i}{\partial t}\right)_{form\_snow} = -\left(\frac{\partial C_s}{\partial t}\right)_{form\_snow} \quad (175)$$

$$\left(\frac{\partial C_i}{\partial t}\right)_{coll\_ice\_snow} = \frac{C_i}{Q_i} \left(\frac{\partial Q_i}{\partial t}\right)_{coll\_ice\_snow} = -\left(\frac{\partial C_s}{\partial t}\right)_{coll\_ice\_snow} \quad (176)$$

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial C_i}{\partial t}\right)_{coll\_ice\_rain} &= \frac{C_i}{Q_i} \left(\frac{\partial Q_i}{\partial t}\right)_{coll\_ice\_rain} = -\left[ \left(\frac{\partial C_s}{\partial t}\right)_{coll\_ice\_snow} + \left(\frac{\partial C_{gp}}{\partial t}\right)_{coll\_ice\_snow} \right] \\ &= D1 \left(\frac{\partial C_i}{\partial t}\right)_{coll\_ice\_rain} + (1 - D1) \left(\frac{\partial C_i}{\partial t}\right)_{coll\_ice\_rain} \end{aligned} \quad (177)$$

où D1, le facteur de répartition entre la neige et la neige roulée est donné par l’équation (114) en 1.4.6.2.

Finalement, le terme source lié à la multiplication de la glace (‘ice\_mult’) s’exprime par :

$$\left(\frac{\partial C_i}{\partial t}\right)_{ice\_mult} = -\left[ \left(\frac{\partial C_s}{\partial t}\right)_{ice\_mult} + \left(\frac{\partial C_{gp}}{\partial t}\right)_{ice\_mult} \right] = -\left[ \frac{C_s}{Q_s} \left(\frac{\partial Q_s}{\partial t}\right)_{ice\_mult} + \frac{C_g}{Q_g} \left(\frac{\partial Q_g}{\partial t}\right)_{ice\_mult} \right] \quad (178)$$

### • Concentrations dans la neige :

L’évolution des concentrations dans la neige par les processus microphysiques est donnée par :

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial C_s}{\partial t}\right)_{mic} &= \left(\frac{\partial C_s}{\partial t}\right)_{dep\_vap\_snow} + \left(\frac{\partial C_s}{\partial t}\right)_{form\_snow} + \left(\frac{\partial C_s}{\partial t}\right)_{coll\_cloud\_snow} \\ &+ \left(\frac{\partial C_s}{\partial t}\right)_{coll\_rain\_snow} + \left(\frac{\partial C_s}{\partial t}\right)_{coll\_snow\_rain} + \left(\frac{\partial C_s}{\partial t}\right)_{coll\_ice\_snow} + \left(\frac{\partial C_s}{\partial t}\right)_{coll\_rain\_ice} \\ &+ \left(\frac{\partial C_s}{\partial t}\right)_{coll\_ice\_rain} + \left(\frac{\partial C_s}{\partial t}\right)_{ice\_mult} + \left(\frac{\partial C_s}{\partial t}\right)_{melt\_snow} + \left(\frac{\partial C_s}{\partial t}\right)_{evap\_melt\_snow} + \left(\frac{\partial C_s}{\partial t}\right)_{sed\_snow} \end{aligned} \quad (179)$$

Le terme de dépôt de vapeur est décrit par l’équation (158) quand le dépôt de vapeur sur la neige est positif et par l’équation (159) en phase d’évaporation.

Les termes de givrage ‘coll\_cloud\_snow’, ‘coll\_rain\_snow’ et ‘coll\_rain\_ice’ sont donnés par l’équation (157).

Les termes ‘form\_snow’, ‘coll\_ice\_snow’, ‘coll\_ice\_rain’ et ‘ice\_mult’ déjà décrits pour la glace nuageuse sont donnés respectivement par les équation (175), (176), (177) et (178) ci-dessus.

Les termes liés à la fonte de la neige ‘melt\_snow’ et ‘evap\_melt\_snow’ sont décrits par les équations (170) et (167).

Le terme ‘coll\_snow\_rain’ correspond au transfert de la neige dans la catégorie de la neige roulée dû au givrage de la pluie sur la neige :

$$\left(\frac{\partial C_s}{\partial t}\right)_{coll\_snow\_rain} = \frac{C_s}{Q_s} \left(\frac{\partial Q_s}{\partial t}\right)_{coll\_snow\_rain} = - \left(\frac{\partial C_{gp}}{\partial t}\right)_{coll\_snow\_rain} \quad (180)$$

Finalement le terme de sédimentation est donné par :

$$\left(\frac{\partial C_s}{\partial t}\right)_{sed\_snow} = \frac{C_s}{Q_s} \left(\frac{\partial Q_s}{\partial t}\right)_{sed\_snow} \quad (181)$$

• **Concentrations dans la neige roulée :**

L'évolution des concentrations dans la neige roulée par les processus microphysiques est donnée par :

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial C_{gp}}{\partial t}\right)_{mic} = & \left(\frac{\partial C_{gp}}{\partial t}\right)_{dep\_vap\_graup} + \left(\frac{\partial C_{gp}}{\partial t}\right)_{freez\_rain} + \left(\frac{\partial C_{gp}}{\partial t}\right)_{rim\_cloud\_ice} + \left(\frac{\partial C_{gp}}{\partial t}\right)_{rim\_ice\_cloud} \\ & + \left(\frac{\partial C_{gp}}{\partial t}\right)_{coll\_cloud\_snow} + \left(\frac{\partial C_{gp}}{\partial t}\right)_{coll\_cloud\_graup} + \left(\frac{\partial C_{gp}}{\partial t}\right)_{coll\_rain\_graup} + \left(\frac{\partial C_{gp}}{\partial t}\right)_{coll\_rain\_ice} \\ & + \left(\frac{\partial C_{gp}}{\partial t}\right)_{coll\_ice\_rain} + \left(\frac{\partial C_{gp}}{\partial t}\right)_{coll\_rain\_snow} + \left(\frac{\partial C_{gp}}{\partial t}\right)_{coll\_snow\_rain} + \left(\frac{\partial C_{gp}}{\partial t}\right)_{ice\_mult} \\ & + \left(\frac{\partial C_{gp}}{\partial t}\right)_{melt\_graup} + \left(\frac{\partial C_{gp}}{\partial t}\right)_{melt\_cloud\_graup} + \left(\frac{\partial C_{gp}}{\partial t}\right)_{melt\_rain\_graup} + \left(\frac{\partial C_{gp}}{\partial t}\right)_{evap\_melt\_graup} \\ & + \left(\frac{\partial C_{gp}}{\partial t}\right)_{sed\_graup} \end{aligned} \quad (182)$$

Le terme de dépôt de vapeur est décrit par l'équation (158) quand le dépôt de vapeur sur la neige roulée est positif et par l'équation (159) en phase d'évaporation.

Les termes de congélation 'freez\_rain' et de givrage 'rim\_cloud\_ice', 'coll\_cloud\_snow', 'coll\_cloud\_graup', 'coll\_rain\_graup', 'coll\_rain\_snow' et 'coll\_rain\_ice' sont donnés par l'équation (157).

Le terme 'rim\_ice\_cloud' correspondant au transfert de la glace nuageuse dans la catégorie neige roulée dû au givrage de l'eau nuageuse sur la glace nuageuse est donné par l'équation (174).

Les termes 'coll\_ice\_rain', 'coll\_snow\_rain' 'ice\_mult' sont donnés respectivement par les équations (177), (180) et (178).

Les termes liés à la fonte de la neige roulée 'melt\_graup', 'evap\_melt\_graup', 'melt\_cloud\_graup' et 'melt\_rain\_graup' sont décrits par les équations (170), (167) et (171).

Finalement le terme de sédimentation est donné par :

$$\left(\frac{\partial C_{gp}}{\partial t}\right)_{sed\_graup} = \frac{C_{gp}}{Q_g} \left(\frac{\partial Q_g}{\partial t}\right)_{sed\_graup} \quad (183)$$

## **Chapitre 3 : Résultats des simulations en nuages mixtes**

Une fois le modèle décrit, nous présentons maintenant dans ce chapitre les résultats obtenus. Le but de ces simulations est de chercher à comprendre l'impact de la prise en compte de la phase glace sur la chimie multiphase. Il a donc d'abord été nécessaire de faire des tests sur la microphysique, afin de comparer nos résultats à ceux de la littérature, pour plusieurs types de masses d'air et de paramétrisations microphysiques. A la suite de cela, l'aspect chimie est abordé par des tests de sensibilité aux paramètres clefs de la chimie des nuages mixtes.

La première partie de ce chapitre présente le cadre météorologique des simulations, les caractéristiques initiales des masses d'air telles les concentrations des espèces chimiques et les propriétés physico-chimiques des aérosols en fonction de leur origine, et les différents choix possibles dans les paramétrisations microphysiques de M2C2. Un tableau récapitulatif de ces choix possibles vient clore cette première partie.

La seconde partie porte sur les résultats microphysiques et permet de comparer dans un premier temps les schémas à un et deux moments pour le neige et le neige roulée, dans un deuxième temps les résultats des simulations d'air maritime et continental pour le schéma à deux moments, et enfin, l'impact de la forme des hydrométéores est abordé par la simulation d'un cas maritime avec cristaux complexes.

La troisième et dernière partie de ce chapitre porte sur les résultats du point de vue chimie. Le pH des gouttelettes est observé et comparé entre une simulation où ont été artificiellement inhibés tous les mécanismes associés à la présence de la glace, dite 'sans glace', et des simulations de nuage mixtes maritimes et continentaux, à cristaux sphériques ou complexes. Ensuite on s'intéresse à l'évolution comparée de quelques espèces d'importance troposphérique dans le nuage maritime mixte et celui où la glace est inhibée. Enfin, l'effet de l'origine de la masse d'air est abordé ainsi que des tests de sensibilité sur la rétention et la constante de Henry effective, ce qui permet de comparer l'aspect chimie du nuage mixte de M2C2 à la littérature.

### **3. Description des simulations**

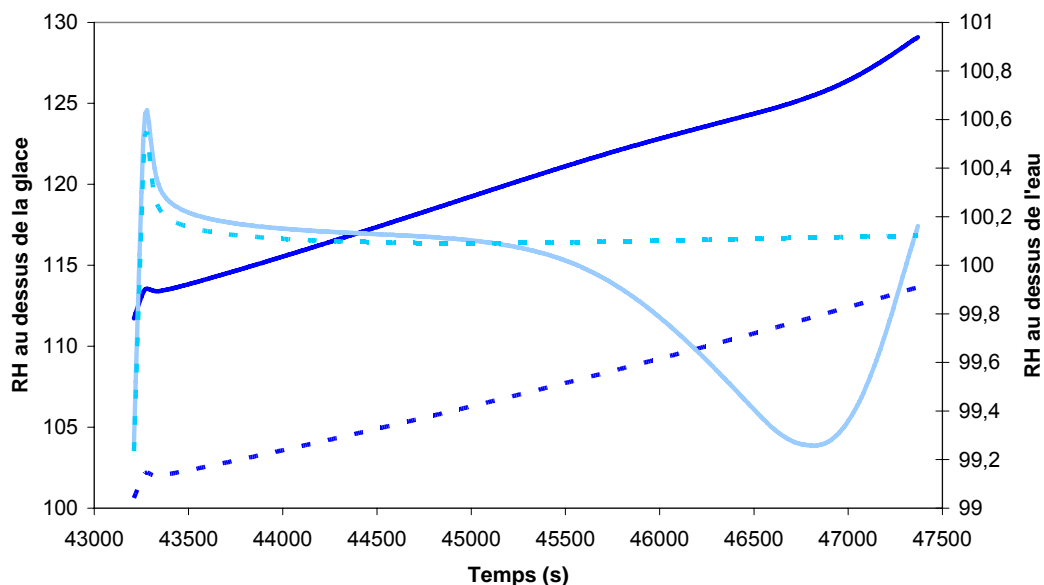
#### ***3.1. Cadre dynamique***

Les simulations de nuages mixtes avec M2C2 ont nécessité l'élaboration d'un cadre dynamique favorable à la formation de la glace. Le but étant d'observer l'impact de la microphysique des nuages mixtes sur la chimie multiphase, un scénario dynamique simplifié a été établi permettant d'obtenir des contenus en hydrométéores glacés non négligeables et de mettre en valeur les processus microphysiques spécifiques des nuages mixtes. De plus, nos simulations s'inspirent de celles de Thompson et al. (2004) qui utilisent un schéma microphysique similaire avec des températures de sommet de nuage de  $-13^{\circ}\text{C}$  et  $-25^{\circ}\text{C}$ .

Notre première simulation utilise un cadre dynamique qui représente un nuage orographique formé à partir d'une parcelle d'air d'origine maritime dont la température initiale est de  $-1^{\circ}\text{C}$ , la pression de 1000 hPa, et l'humidité relative de 99%. A partir de 12h, cette masse d'air s'élève durant 1h10 à la vitesse de 0,4m/s, pour atteindre une température de  $-13^{\circ}\text{C}$  en fin de simulation.

La seconde simulation utilise le même cadre dynamique, mais la température initiale de la masse d'air est de  $-12^{\circ}\text{C}$ , ce qui aboutit à une température finale de  $-25^{\circ}\text{C}$ . Ce second cadre permet d'obtenir des rapports de mélange élevés en hydrométéores glacés et il sera utilisé pour la

simulation de référence. La figure (28) présente l'évolution des humidités relatives au dessus de l'eau liquide et de la glace pour les deux types de simulations.



**Figure 28 : Évolution des humidités relatives par rapport à l'eau (bleu ciel) et par rapport à la glace (bleu foncé) pour des simulations avec une température finale de -25°C (trait plein) et de -13°C (trait pointillé).**

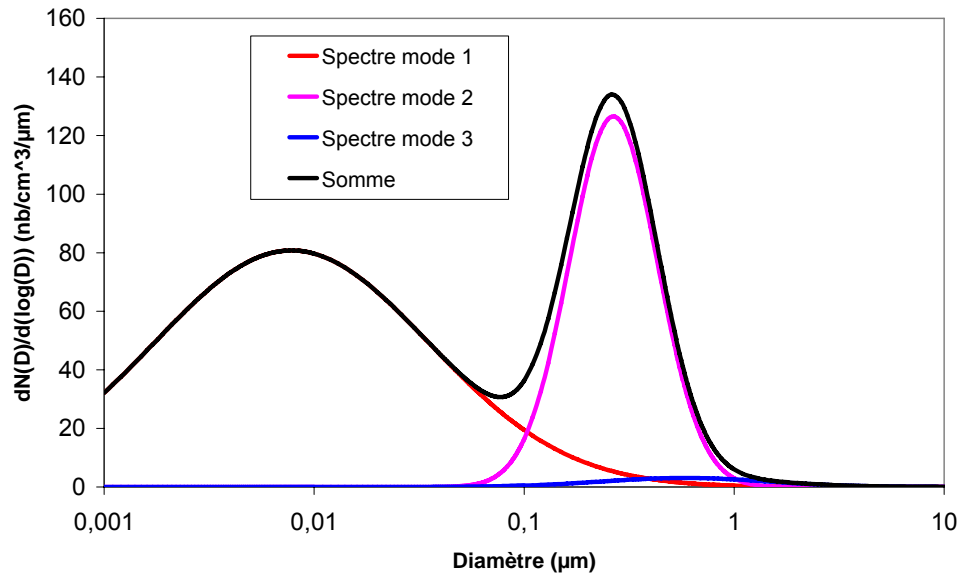
### 3.2. Types d'aérosols et de masse d'air

La nature des aérosols varie en fonction de leur origine. Nous avons simulé ici deux types de masses d'air : l'une d'origine maritime et l'autre d'origine continentale. On utilise pour cela des représentations tri-modales des spectres d'aérosols existants dans la littérature. Dans M2C2, il est possible de prendre en compte des natures chimiques différentes pour chacun des modes d'aérosols. De plus, le nombre de modes n'est pas limité, ce qui permet une grande variabilité dans le choix des caractéristiques tant physiques que chimiques de ces aérosols (Leriche et al., 2007).

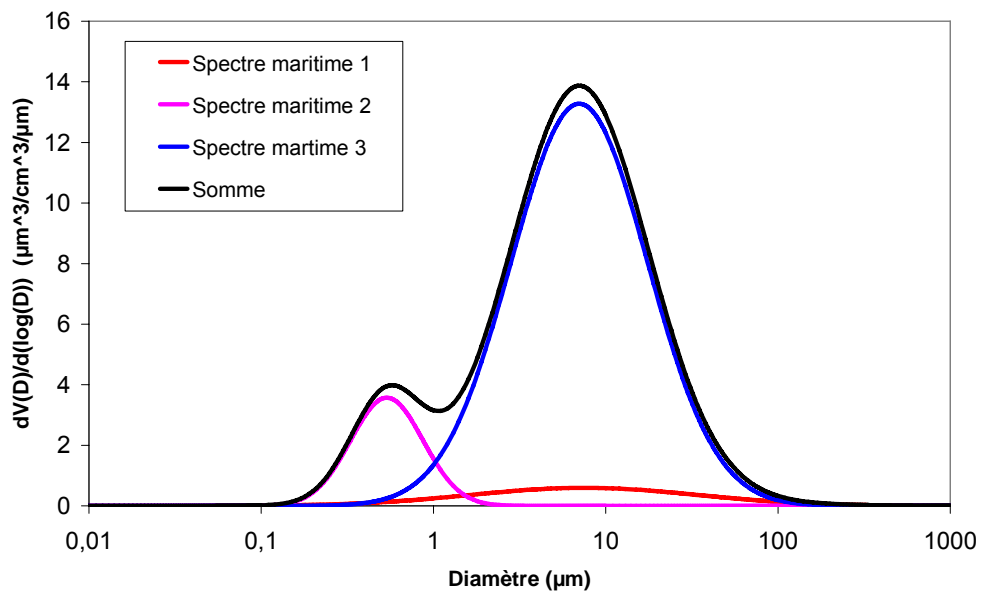
**Tableau 6 : Caractéristiques physico-chimiques des spectres d'aérosols pour le cas maritime, d'après Jaenicke. (1988).**

Mode	1	2	3
Espèces chimiques	Na, Cl	Na, Cl	Na, Cl
Masse volumique (g/cm <sup>3</sup> )	2,165	2,165	2,165
Nombre d'ions dissociés	2	2	2
Fraction massique soluble	1	1	1
Masse molaire (g/mol)	58,5	58,5	58,5
Amplitude des spectres (nb/cm <sup>3</sup> )	133	66,6	3,06
Rayon géométrique moyen (μm)	0,0039	0,133	0,29
Écart type	0,657	0,21	0,396
Diamètre de coupure (70%en masse) (μm)	16,5	0,7	11,3

Le tableau (6) présente les caractéristiques physico-chimiques des aérosols utilisés dans la simulation d'une masse d'air maritime par M2C2, ces aérosols étant composés uniquement de cristaux de sel marin. Les distributions sont celles de Jaenicke et al. (1988) typiques d'un air marin avec une concentration en nombre assez faible d'aérosols. Les figures (29) et (30) ci-dessous permettent de visualiser le spectre maritime en nombre et en volume, ainsi que la somme des trois spectres. On remarquera que si pour la distribution en nombre, le mode d'accumulation est prépondérant, il ne l'est pas en volume, où les grosses particules deviennent prépondérantes.



**Figure 29 : Distributions en nombre des aérosols maritimes, selon Jaenicke et al. (1988).**

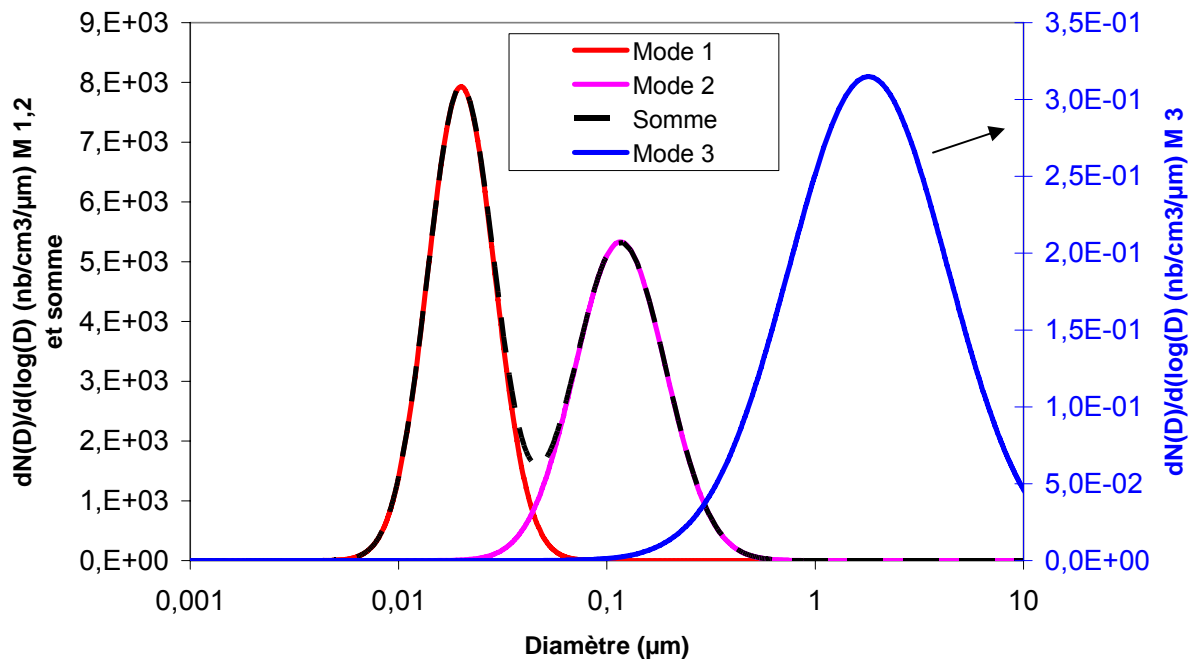


**Figure 30 : Distributions volumique des aérosols maritimes selon Jaenicke et al. (1988).**

Le tableau (7) présente les caractéristiques physico-chimiques des aérosols de type continental, composés de sulfate d'ammonium qui proviennent de Jaenicke (1993). On remarquera que les aérosols continentaux sont d'une taille inférieure à celle des aérosols maritimes, mais que leur nombre est supérieur de plus d'un ordre de grandeur. Les figures (31) et (32) présentent les distributions en nombre et en volume de ces aérosols continentaux. Notons que le mode des grosses particules, totalement négligeable en nombre, est prépondérant en volume, et donc en masse.

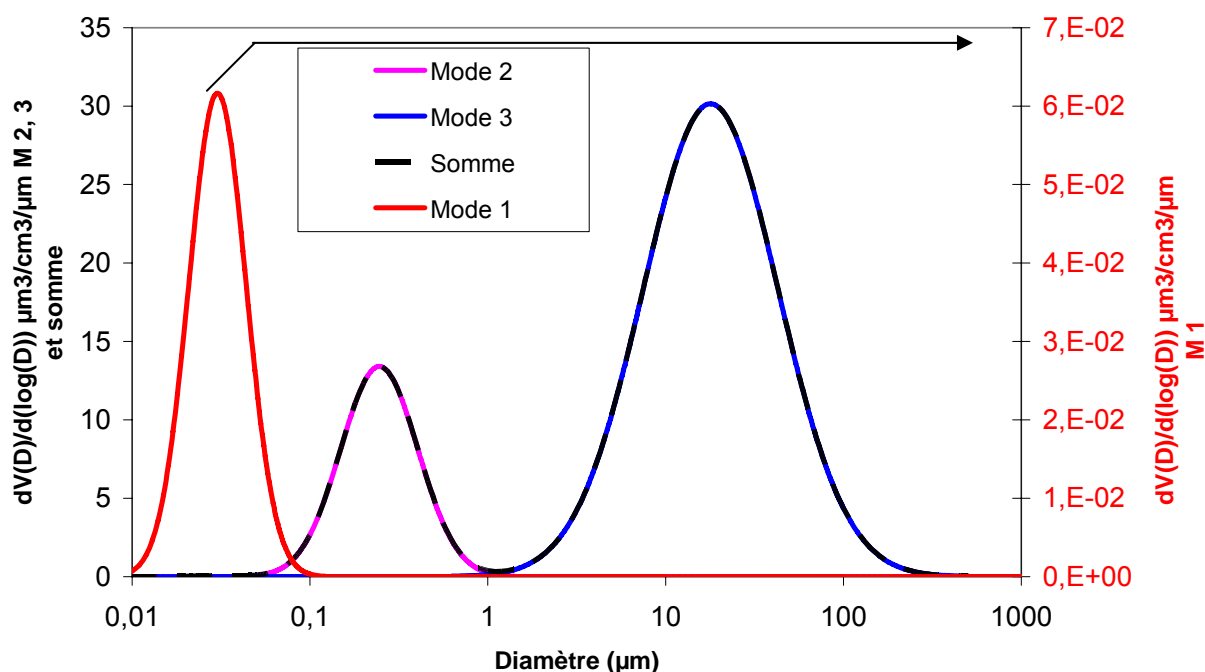
**Tableau 7 : idem tableau 6, cas continental d'après Jaenicke (1993).**

Mode	1	2	3
Espèces chimiques	NH <sub>3</sub> , H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	NH <sub>3</sub> , H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	NH <sub>3</sub> , H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>
Masse volumique (g/cm <sup>3</sup> )	1,77	1,77	1,77
Nombre d'ions dissociés	3	3	3
Fraction massique soluble	0,5	0,5	0,5
Masse molaire (g/mol)	132	132	132
Amplitude des spectres (nb/cm <sup>3</sup> )	3200	2900	0,3
Rayon géométrique moyen (μm)	0,01	0,058	0,9
Écart type	0,161	0,217	0,380
Diamètre de coupure (70% en masse) (μm)	0,037	0,32	28,3



**Figure 31 : Distributions en nombre des aérosols continentaux selon Jaenicke (1993).**





**Figure 32 : Distributions volumiques des aérosols continentaux selon Jaenicke (1993).**

Après avoir initialisé les caractéristiques physiques et chimiques des aérosols, il faut aussi prendre en compte les caractéristiques des gaz atmosphériques qui sont également fonction de l'origine de la masse d'air. Pour prendre en compte ces propriétés nous pouvons initialiser dans M2C2 les concentrations typiques en gaz de masses d'air maritimes et continentales fournies par la littérature et indiquées dans le tableau (8), selon Williams et al. (2002) pour la masse d'air maritime, et Leriche et al. (2000) pour la masse d'air continentale.

**Tableau 8 : Concentrations initiales des espèces chimiques dans la phase gazeuse en fonction de la nature de la masse d'air.**

Espèces chimiques	Concentrations maritimes d'après Williams et al. (2002) (ppbv)	Concentrations continentales d'après Leriche et al. (2000) (ppbv)
H <sub>2</sub> O	100% Humidité Relative	100% Humidité Relative
O <sub>3</sub>	30	37
NO	0	0,9
NO <sub>2</sub>	0,1	6,2
CH <sub>4</sub>	1700	1600
CO <sub>2</sub>	3,3 10 <sup>5</sup>	3,3 10 <sup>5</sup>
CO	140	100
HNO <sub>3</sub>	0,15	0,15
HNO <sub>2</sub>	0	0,054
H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	1	0,07
CH <sub>2</sub> O	0,5	6
SO <sub>2</sub>	0,1	0,45
HCOOH	0,25	0,28
CH <sub>3</sub> OOH	1	0
CH <sub>3</sub> OH	0,5	2,25
NH <sub>3</sub>	0,5	0,13
HCl	0,5	0,07

Selon la paramétrisation de la nucléation utilisée, les espèces chimiques solubles présentes dans les aérosols sont prises en compte ou non dans M2C2. La paramétrisation de la nucléation présentée par Chaumerliac et al. (1987) ne permet pas de prendre en compte la nature chimique des aérosols pour la chimie multiphase, et nécessite donc de définir la composition chimique initiale des gouttelettes nuageuses en fonction du type de masse d'air. Par contre, La paramétrisation présentée par Abdul-Razzak et al. (1998, 2000) permet d'initialiser la composition chimique des gouttelettes nuageuses à partir des espèces chimiques solubles provenant des aérosols activés. Le tableau (9) présente les fractions massiques solubles des espèces chimiques pour chacun des modes des aérosols pour les masses d'air maritime et continentale. Les concentrations initiales des gouttelettes calculées à partir de ces fractions solubles provenant de l'activation des aérosols sont présentées dans le tableau (10) pour les masses d'air maritime et continentale.

**Tableau 9 : Fractions massiques des espèces solubles pour chacun des trois modes des aérosols maritimes et continentaux.**

Type de masse d'air	Modes	Fraction massique soluble des espèces solubles
<b>Maritime</b>	<b>1</b>	Na : 0,6 Cl : 0,4
	<b>2</b>	Na : 0,6 Cl : 0,4
	<b>3</b>	Na : 0,6 Cl : 0,4
<b>Continentale</b>	<b>1</b>	NH <sub>4</sub> : 0,27 SO <sub>4</sub> : 0,73
	<b>2</b>	NH <sub>4</sub> : 0,27 SO <sub>4</sub> : 0,73
	<b>3</b>	NH <sub>4</sub> : 0,27 SO <sub>4</sub> : 0,73

**Tableau 10 : Concentrations initiales des gouttelettes nuageuses obtenues à partir de la fraction massique des espèces solubles provenant de l'activation des aérosols pour les masses d'air maritime et continentale.**

Type de masse d'air	Concentration initiale provenant de l'activation des aérosols.
Maritime	$[\text{Na}^+] = [\text{Cl}^-] = 1,39 \cdot 10^{-2} \text{ M}$
Continentale	$[\text{SO}_4^{2-}] = 4,37 \cdot 10^{-3} \text{ M}$ $[\text{NH}_4^+] = 8,65 \cdot 10^{-3} \text{ M}$

### 3.3. Présentation des simulations effectuées

Après avoir fixé les particularités de la masse d'air et la dynamique, deux types de schéma sont disponibles pour la microphysique mixte dans M2C2. Un premier schéma est à 2 moments pour l'eau nuageuse, la pluie, la glace primaire mais à un moment pour la neige et la neige roulée, pronostique pour le rapport de mélange et diagnostique pour le contenu en nombre. Il utilise les approches présentées par Thompson et al. (2004), avec au choix pour la neige une détermination diagnostique du contenu en nombre en fonction du rapport de mélange en neige ou de la température et pour la neige roulée, en fonction de son rapport de mélange.

La forme des hydrométéores glacés peut aussi faire l'objet de choix dans M2C2 : on peut soit considérer des hydrométéores sphériques (Reisner et al., 1998 ; Thompson et al., 2004), soit considérer des hydrométéores de formes plus complexes (Locatelli et al., 1974 ; Thompson et al., 2006).

**Tableau 11 : Résumé des paramètres servant à caractériser la pluie et chaque catégorie de glace.**

Paramètres	Glace primaire	Neige sphérique	Neige non sphérique	Neige roulée sphérique	Neige roulée non sphérique	Pluie
$\alpha$	1	1	1	1	1	1
$v$	2	2	2	2	2	4
$a$	262	52,4	0,02	209,6	19,6	524
$b$	3	3	1,9	3	2,8	3
$c$	700	11,72	5,1	19,3	124	842
$d$	1	0,41	0,27	0,37	0,66	0,8

Où  $m = aD^b$  est en kg,  $v = cD^d(\rho_0/\rho_a)^{0,4}$  en m/s

Le tableau (11) résume les paramètres définissant la distribution gamma pour la glace nuageuse, la neige, la neige roulée et la pluie, ainsi que les paramètres utilisés dans les relations masses diamètres et vitesses diamètres décrivant la masse et la vitesse de chute des hydrométéores. Toutes les valeurs de  $a, b, c$  et  $d$  sont données par Locatelli et Hobbs (1974) pour les hydrométéores précipitants (neige, neige roulée, pluie) et par Ikawa et Saito (1991) pour la glace primaire, avec des hydrométéores glacés considérés comme sphériques ou non. On remarque que la valeur du paramètre 'b' renseigne sur la forme de l'hydrométéore, la neige ayant un coefficient  $b$  de 1,9 se présente sous la forme de plaquettes, alors que la neige roulée avec  $b=2,8$  se rapproche plus d'une sphère.

En résumé, plusieurs options sont possibles dans M2C2 concernant la dynamique, le type de masse d'air, la paramétrisation de la nucléation des gouttelettes, la forme des hydrométéores avec les relations masses diamètres et vitesses diamètres. Nous pouvons aussi choisir un schéma à un ou deux moments pour la neige et la neige roulée. Le tableau (12) présente la simulation de référence et les simulations tests qui ont été effectuées par rapport à cette simulation de référence.

**Tableau 12 : Présentation de la simulation de référence et autres choix possibles dans M2C2**

Paramètre	Simulation de référence	Autres simulations effectuées
Température finale au sommet du nuage	CTT=-25°C	CTT=-13°C
Nucléation	Abdul-Razzak et al. (1998, 2000)	Chaumerliac et al. (1987)
Forme des hydrométéores glacés	Sphérique	Locatelli et Hobbs (1974)
Schéma microphysique	Deux moments pour tous les hydrométéores	Un moment pour la neige et la neige roulée, deux moments pour l'eau nuageuse, la glace primaire, la pluie
Type de masse d'air (phase gaz et aérosols)	Maritime	Continentale

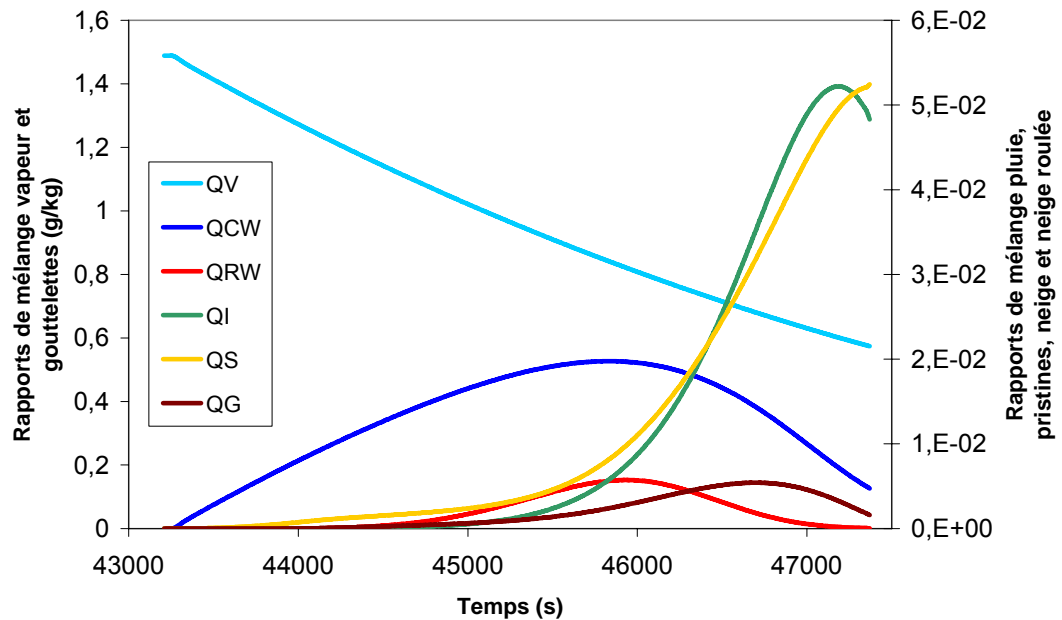
Par la suite, on parlera de la simulation de référence et pour les autres, seul un paramètre sera changé à la fois par rapport à la référence.

## **4. Résultats : étude de la microphysique des nuages mixtes**

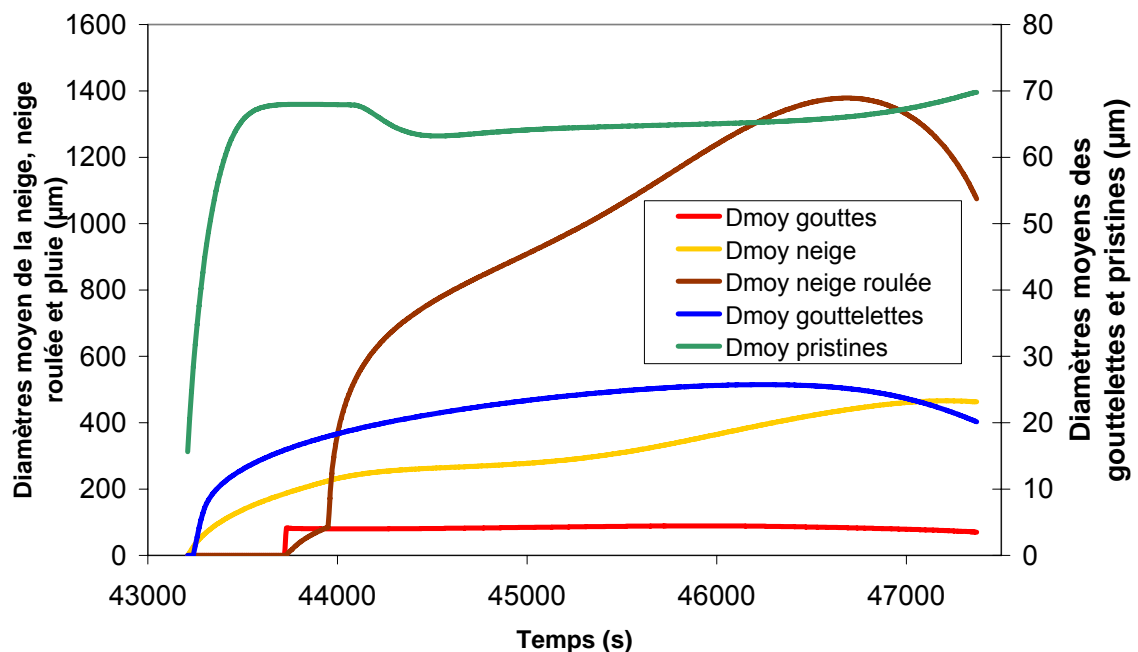
### ***4.1. Résultats de la simulation à 1 moment pour la neige et la neige roulée***

Avant de présenter la simulation qui nous servira de référence pour la suite de notre étude sur la chimie des nuages mixtes, une simulation préliminaire a été effectuée en utilisant le schéma à un moment pour la neige et la neige roulée, où seules les pristines sont pronostiquées. Cette présentation est voulue car elle reflète la chronologie du travail réalisé et permettra de justifier nos choix pour la simulation de référence où toutes les catégories de glace seront pronostiquées avec deux moments (l'un pour le rapport de mélange, l'autre pour la concentration en nombre). La configuration de cette simulation utilise une dépendance à la température pour le nombre de flocons de neige et une dépendance au rapport de mélange pour le nombre de flocons de neige roulée. L'effet principal de cette paramétrisation est qu'elle favorise la formation d'un grand nombre de cristaux de glace primaire comme le montre la figure (35). En analysant les taux microphysiques, on découvre que cette production importante de glace primaire est due au fait que le nombre de flocons de neige formés depuis la glace nuageuse est beaucoup plus faible qu'avec le schéma tout pronostique. Il en résulte une perte de l'eau nuageuse par givrage sur la neige beaucoup plus faible et par ricochet une formation accentuée de pristines depuis les gouttelettes nuageuses par congélation hétérogène. Le deuxième effet de ce schéma microphysique à un moment est la formation de flocons de neige roulée de grande taille, et donc moins nombreux, comme on peut l'observer sur la figure (34), sédimentant plus vite que dans le cas tout pronostique. Le calcul du paramètre d'interception en fonction du rapport de mélange de la neige roulée est à l'origine de ce nombre réduit de flocons de neige roulée. D'un point de vue physique, il peut sembler curieux de déterminer le nombre de flocons de neige roulée uniquement à partir du rapport de mélange, quels que soient ses modes de formation et de perte alors que les mécanismes aboutissant à la formation de cet hydrométéore sont nombreux et variés, comme la congélation ou le givrage de la pluie, le givrage intense de gouttelettes sur la neige ou la glace élémentaire. Ces derniers mécanismes font entrer en jeu des hydrométéores de taille très variée, donc pour un même rapport de mélange, le diamètre moyen des flocons de neige roulée obtenus par le biais de ces mécanismes dépendra grandement de leur importance relative. Cette constatation est au cœur du choix d'un schéma microphysique, et amène à sélectionner, si c'est possible, un schéma à deux moments donnant un degré de liberté supplémentaire permettant de faire varier le nombre, donc la taille, indépendamment du rapport de mélange. De plus la sédimentation est un mécanisme

primordial dans l'évolution d'un nuage mixte, et ce mécanisme est très sensible à la taille des hydrométéores formés, on comprend l'importance particulière que revêt donc une paramétrisation la plus exacte possible de la concentration en nombre des hydrométéores en plus du rapport de mélange.



**Figure 33 : Évolution des rapports de mélange, schéma à un moment pour la neige et la neige roulée.**



**Figure 34: Évolution des diamètres moyens des hydrométéores, schéma à un moment pour la neige et la neige roulée.**

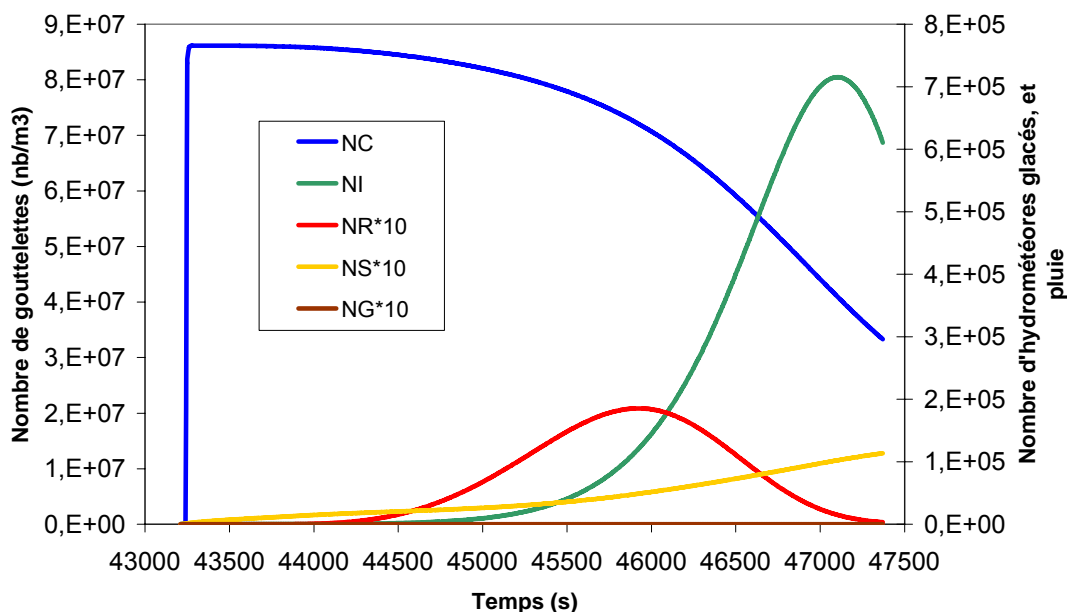


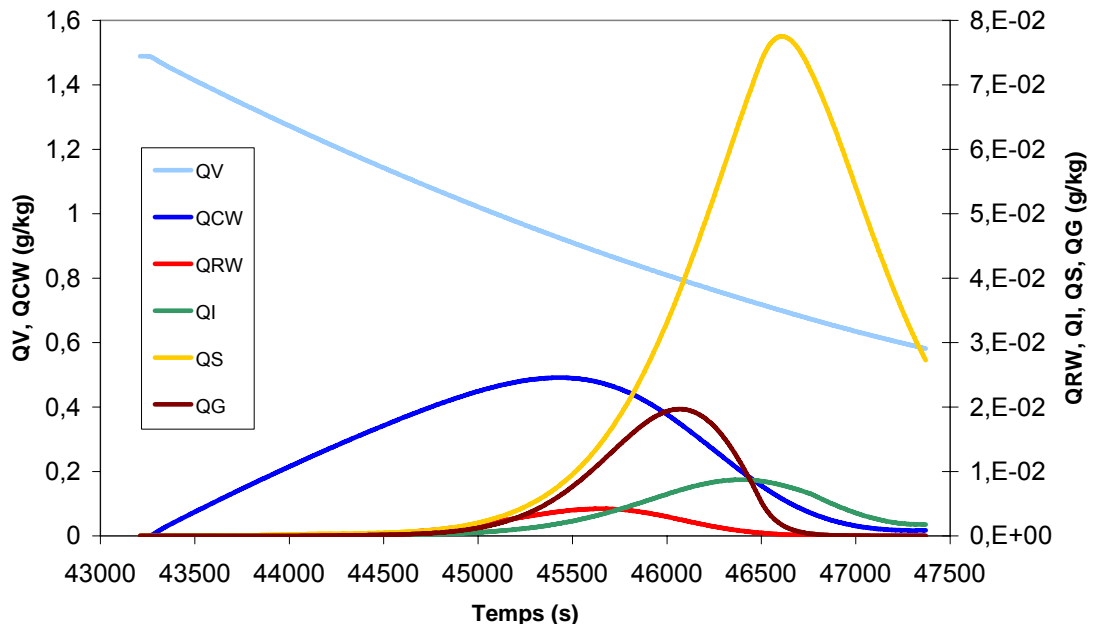
Figure 35 : Évolution du contenu en nombre, schéma à un moment pour la neige et la neige roulée.

#### 4.2. Résultats de la simulation de référence : schéma à 2 moments pour la neige et la neige roulée

Les simulations utilisant le schéma à deux moments permettent de suivre avec plus de réalisme les transferts entre les différents types d'hydrométéores, et de mieux prévoir l'évolution des rapports de mélange et des concentrations en nombre, en reproduisant mieux les observations faites sur le terrain (Reisner et al., 1998) qu'avec le schéma à un moment diagnostiquant à chaque pas de temps le nombre de chaque type d'hydrométéore à l'aide de son rapport de mélange. Cependant, le passage à une paramétrisation à deux moments nécessite 2 variables supplémentaires, mais aussi de complexes paramétrisations permettant de calculer les termes sources et puits pour les contenus en nombre de la neige et de la neige roulée, qui sont coûteuses en temps de calcul (Reisner et al., 1998). Le schéma mixte à deux moments est la version la plus aboutie de la microphysique dans M2C2, et c'est cette version qui sera utilisée pour l'étude de l'impact des nuages mixtes sur la chimie multiphase.

La simulation dite de 'référence' utilise le schéma à deux moments, la nucléation des gouttelettes nuageuse selon Abdul-Razzak et al. (2000), la température de sommet du nuage à  $-25^{\circ}\text{C}$ , les paramétrisations masses/diamètre et vitesse/diamètre selon Reisner et al. (1998) et une masse d'air maritime (tableau (12)). Les figures (36), (37) et (38) représentent respectivement les évolutions des rapports de mélange, des concentrations en nombre et des diamètres moyens pour cette simulation de référence.

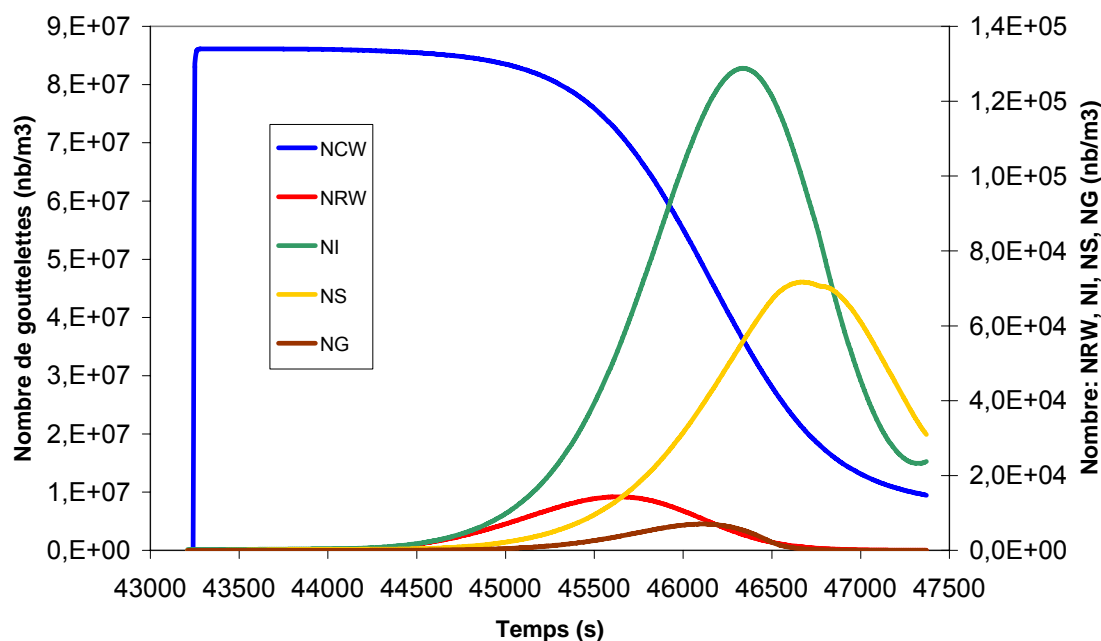
Reisner et al. (1998) montrent que leur schéma diagnostique pour le nombre de flocon de neige et de neige roulée tend à favoriser la perte d'eau nuageuse par dépôt de vapeur sur la neige et non la perte d'eau nuageuse par givrage alors que le schéma pronostique favorise la perte d'eau par givrage et non par dépôt de vapeur. On observe le même mécanisme avec les simulations diagnostiques et pronostiques de M2C2, avec un mécanisme de givrage prépondérant dans le cas pronostique alors que dans le cas diagnostique, l'évaporation de l'eau nuageuse au profit des hydrométéores glacés est prépondérante.



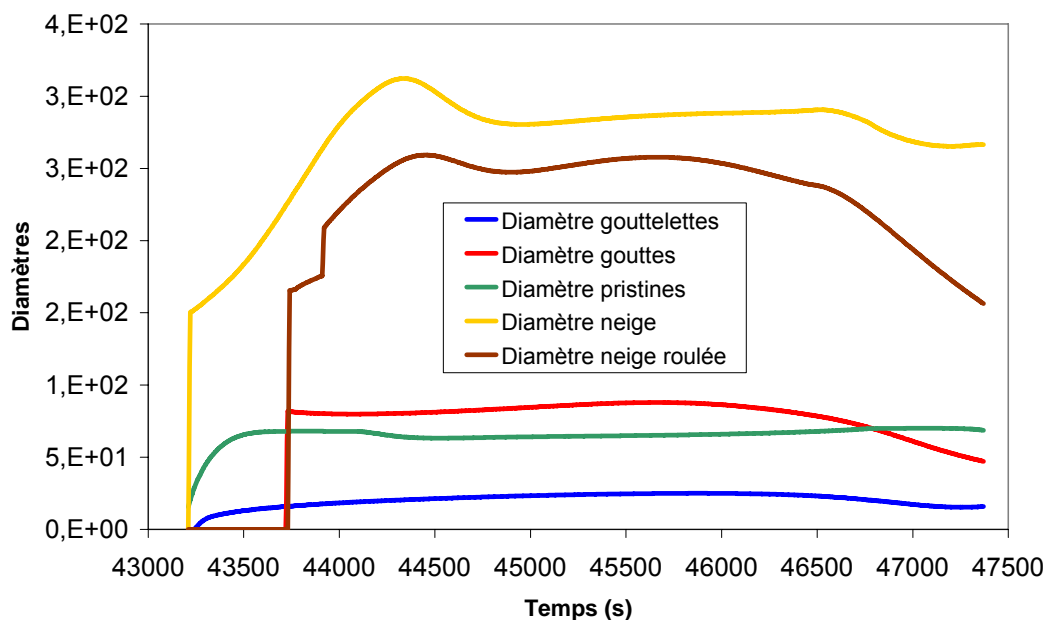
**Figure 36 : Évolution des rapports de mélange durant la simulation de référence**

On peut observer sur les figures (36) et (37), que le nuage se constitue dans un premier temps sous la forme de gouttelettes nuageuses (en bleu foncé), et c'est seulement au bout d'une vingtaine de minutes que les hydrométéores glacés apparaissent en nombre, avec en premier la glace nuageuse (vert), avec de nombreux cristaux très légers, qui initient par givrage et dépôt de vapeur les flocons de neige (orange) et de neige roulée (marron), en même temps, un peu de pluie se forme (courbe rouge). Juste avant  $t=45500$  s (après 38 minutes de simulation), le contenu en gouttelettes atteint son maximum, à ce moment là, les pertes en gouttelettes dues aux mécanismes de collection par les hydrométéores glacés sont identiques aux gains par dépôt de vapeur sur les gouttelettes. En seulement quelques minutes, le nombre de cristaux de glace élémentaire augmente très vite au détriment des gouttelettes (figure 37), et les hydrométéores glacés, de plus en plus nombreux, croissent rapidement au détriment de l'humidité relative, du fait d'une pression de vapeur saturante au dessus de la glace plus faible qu'au dessus de l'eau liquide. Très rapidement, l'humidité relative par rapport à l'eau liquide devient sous-saturée alors qu'elle reste sursaturée au dessus de la glace, (figure (28)), et les gouttelettes s'évaporent au profit des hydrométéores glacés : c'est l'effet Bergeron. Entre  $t=45500$  s et  $t=45600$  s, nous assistons à la période où le transfert des hydrométéores liquides vers les hydrométéores glacés est le plus élevé, d'une part avec les mécanismes de collection, et d'autre part avec l'effet Bergeron. Remarquons que la neige roulée diminue dès  $t=46000$ , et ceci pour deux raisons. La première est le mode de fabrication de la neige roulée depuis la neige (si le givrage de la neige dépasse le dépôt de vapeur, alors la partie supérieure au dépôt de vapeur est transférée en neige roulée) qui nécessite un givrage intense, que la chute rapide du nombre de gouttelettes nuageuse ne permet plus passé  $t=46200$  s. La seconde est la densité des flocons de neige roulée associée à leur diamètre moyen élevé, causant rapidement leur élimination par sédimentation dès que la production faiblit. On observe le même phénomène pour la neige vers  $t=46700$  s, moment à partir duquel le dépôt de vapeur et le givrage ne suffit plus pour compenser les pertes par sédimentation. En toute fin de simulation, on assiste à une dissipation du nuage par sédimentation. Si on observe l'évolution des diamètres moyens, on constate que pendant les 15 minutes qui suivent leur apparition, les gouttelettes, les cristaux de glace et les flocons de neige croissent pour atteindre la taille moyenne qu'ils conserveront à peu près jusqu'à la dissipation du nuage par précipitation. Pour les gouttelettes, le diamètre croît

jusqu'en  $t=46000$  s, et décroît lentement par la suite, moment à partir duquel l'humidité relative au dessus de l'eau devient inférieure à 100% par effet Bergeron (figure (38)). La neige roulée apparaît juste après la pluie, par congélation hétérogène des gouttes de pluie, et par givrage de la pluie sur la neige. Quelques minutes après, à  $t=43920$  s, le givrage des gouttelettes sur la neige dépasse le dépôt de vapeur sur la neige et on forme de la neige roulée à partir des gros flocons de neige, d'où le saut du diamètre moyen de la neige roulée à cet instant (figure (38)).



**Figure 37 : Évolution du contenu en nombre, simulation de référence.**



**Figure 38 : Évolution des diamètres moyens, simulation de référence.**

Le tableau 13 présente les maximums de concentrations en nombre et en rapport de mélange obtenus par Thompson et al. (2004) avec le modèle MM5 pour la simulation CONTROL dont la



température minimale est de  $-25^{\circ}\text{C}$  et avec notre simulation M2C2 de référence. Par la suite, la simulation CONTROL de Thompson et al. 2004 sera référencée par THP04-CTT-25.

**Tableau 13 : Maxima (nombre et rapport de mélange) obtenus par Thompson et al. (2004) pour la simulation CONTROL et avec M2C2 pour la simulation de référence.**

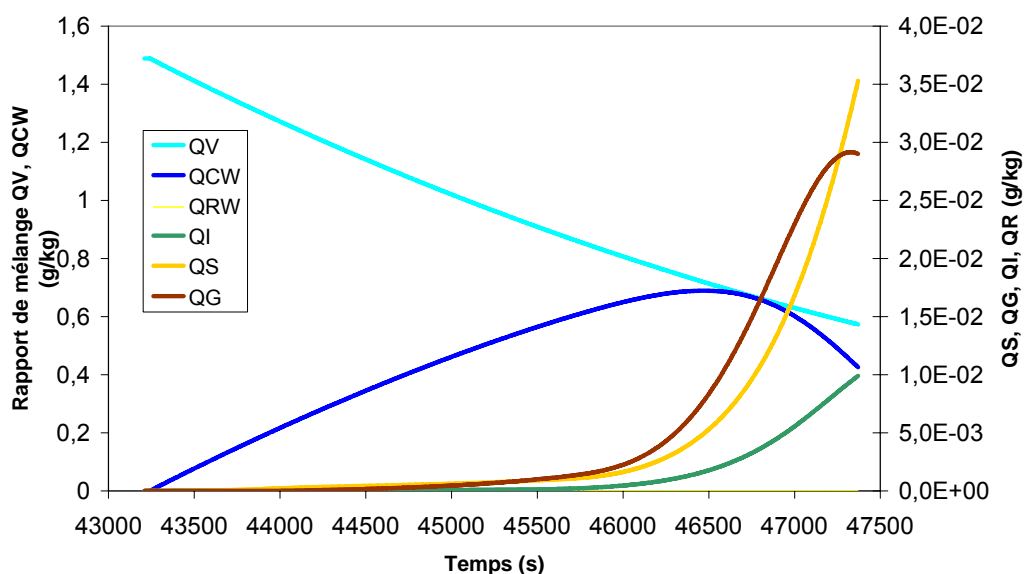
Max Q (g/kg) N (nb/l)	Qc	Nc	Qr	Nr	Qi	Ni	Qs	Ns	Qg	Ng
M2C2 Maritime CTT-25	0,5	$0,87 \cdot 10^8$	0,0045	14	$9 \cdot 10^{-3}$	130	0,078	70	0,02	8
Thompson control CTT-25	0,24	$1,0 \cdot 10^8$	0		$3,5 \cdot 10^{-3}$	40	0,18		0,029	

La comparaison entre les résultats de THP04-CTT-25 et ceux de M2C2 n'est pas aisée, car la THP04-CTT-25 utilise un cadre dynamique bidimensionnel, alors que la simulation M2C2 décrit l'évolution temporelle d'une parcelle d'air. La principale différence, d'un point de vue microphysique, entre ces deux simulations provient de l'influence des différentes couches nuageuses les unes sur les autres dans le schéma de THP04-CTT-25, en effet, les cristaux de glace formés à haute altitude vont grossir et sédimenter à travers les couches inférieures, pauvres en glace mais très riches en eau liquide, ces cristaux de glace vont donc beaucoup grossir par givrage et dépôt de vapeur et appauvrir les basses couches en eau liquide. Il en résulte un maximum en eau nuageuse plus faible qu'avec M2C2 et au contraire un rapport de mélange maximum des hydrométéores glacés plus élevé (tableau (13)), à l'exception des pristines dont la formation par congélation hétérogène est favorisée par le rapport de mélange plus élevé en eau nuageuse. Le nuage simulé par M2C2 se rapproche beaucoup des nuages givrants, très riches en eau surfondue, même à basse température, tant redoutés des avions. Dans la nature, ces nuages sont caractérisés par un manque d'ensemencement de cristaux de glace primaire provenant des parties les plus hautes du nuage, de par leur température de sommet de nuage trop faible, ou par l'absence de nuages de hautes altitudes pouvantensemencer le nuage sous jacent en cristaux de glace.

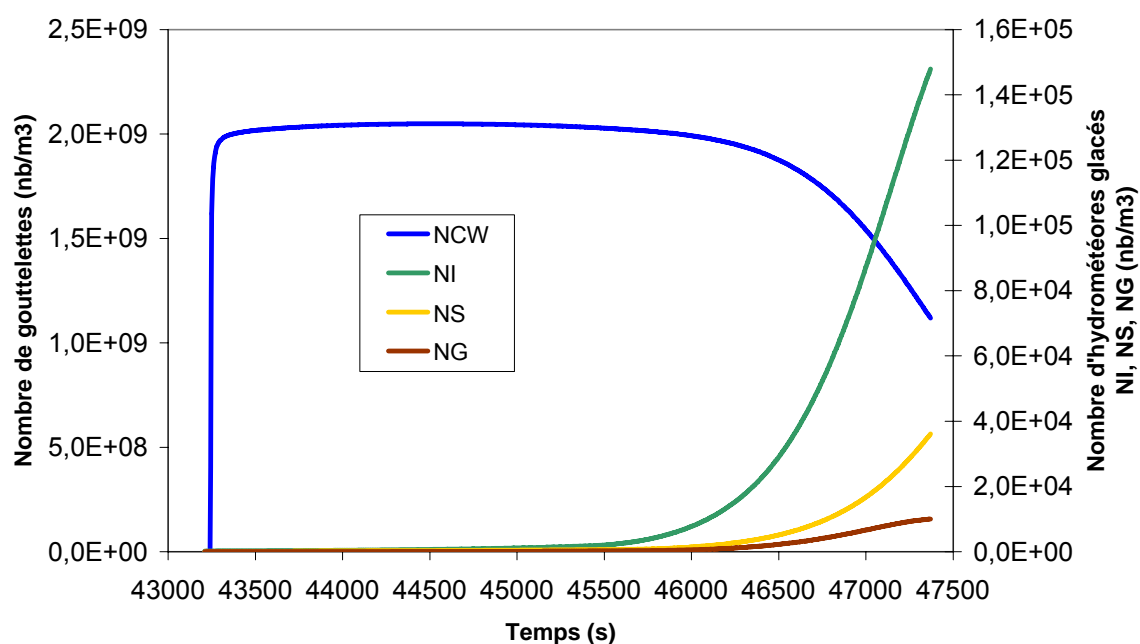
Cependant malgré ces différences entre THP04-CTT-25 et la simulation de référence de M2C2, on constate que les ordres de grandeur des rapports de mélange et des concentrations en nombre sont comparables ce qui permet de vérifier la validité du schéma microphysique de M2C2.

#### **4.3. Résultats de la simulation en masse d'air continentale**

Les résultats présentés dans cette partie utilisent les caractéristiques de la masse d'air continentale, les autres conditions de la simulation sont identiques à la simulation de référence. Ceci a permis de tester l'impact de la nature de la masse d'air sur l'évolution du nuage. Le propre d'une masse d'air continental est d'abriter un nombre de noyaux de condensation beaucoup plus élevé qu'un air d'origine maritime. Dans notre cas, nous obtenons un nombre de gouttelettes nuageuses initialement produit par nucléation durant l'ascension environ 20 fois supérieur au cas maritime, avec  $2 \cdot 10^9$  gouttelettes par mètre cube (figure (40)) contre  $9 \cdot 10^7$  dans le cas maritime (figure (37)). L'effet de ce très grand nombre de gouttelettes est important sur l'évolution du nuage mixte car, en premier lieu il inhibe l'autoconversion des gouttelettes nuageuses en pluie, révélée par l'absence de pluie dans le cas continental (figure (39)).



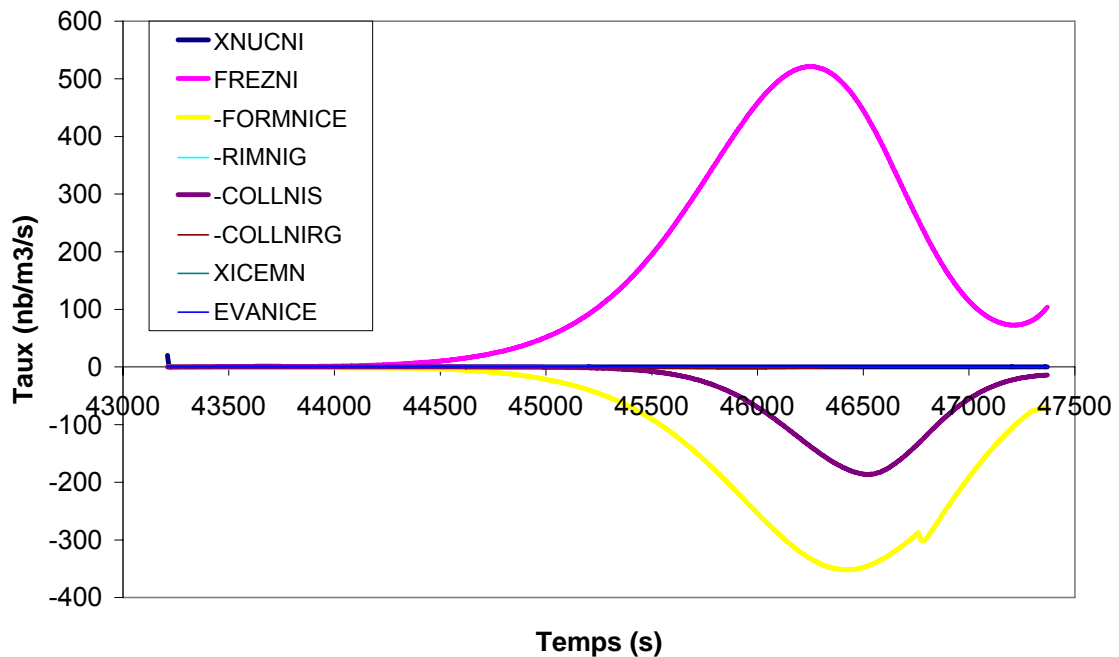
**Figure 39 : Évolution des rapports de mélange durant la simulation d'un nuage type continental.**



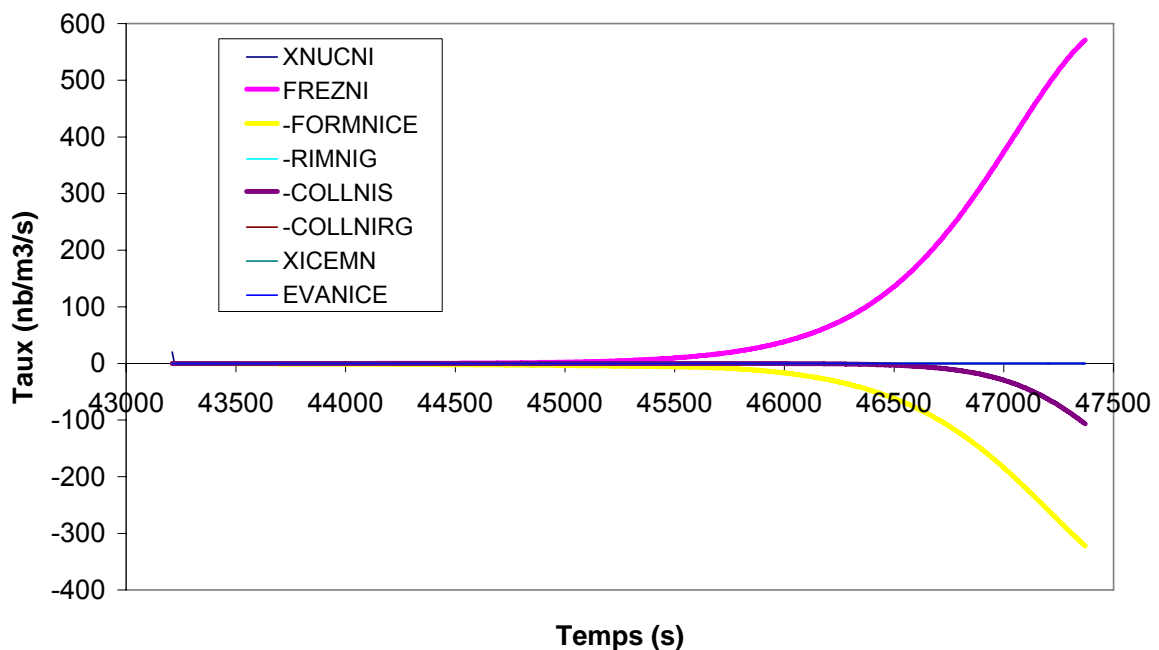
**Figure 40 : Évolution du contenu en nombre durant la simulation d'un nuage type continental.**

De plus, ce nombre très élevé de gouttelettes retarde l'apparition d'hydrométéores glacés par congélation hétérogène des gouttelettes nuageuses moins efficace dans le cas continental que dans le cas maritime. En effet, la congélation hétérogène des gouttelettes nuageuses (FREZQI, FREZNI) est proportionnelle à  $Q_c^2/N_c$  (cf. chapitre II 1.4.3.2., équations (49) et (50)). Si le contenu en eau nuageuse du cas continental est très proche de celui du cas maritime (figures (36) et (39)), le nombre de gouttelettes est, lui, très supérieur (figures (37) et (40)). Ainsi le rapport cité ci-dessus a une valeur bien plus faible dans le cas continental, pénalisant la formation de la glace nuageuse, sauf en toute fin de simulation, lorsque FREZQI augmente avec la baisse de la température. Les figures (41) et (42) représentent les taux microphysiques de production/destruction de la glace

nuageuse pour la simulation maritime de référence et la simulation continentale. Elles permettent de visualiser le décalage temporel dans la production de la glace nuageuse induit par la différence d'activation des aérosols en gouttelettes.



**Figure 41 : Taux de production/destruction de la glace nuageuse en nombre, simulation de référence.**



**Figure 42 : Taux de production/destruction de la glace nuageuse en nombre, simulation continentale.**

Ce décalage s'avère d'une importance prépondérante pour le devenir du nuage, car la formation des flocons de neige est essentiellement due à la croissance des cristaux de glace primaire par dépôt de vapeur comme le montre les figures (43) et (44) détaillant les taux de production/destruction de la neige en nombre pour la simulation de référence et la simulation continentale (FORMNS en nombre directement proportionnel à la production en rapport de mélange FORMQS, les flocons ainsi produits ayant une masse seuil fixée). On note la production

bien plus précoce de la neige dans la simulation de référence, ce qui lui permet par la suite de croître plus tôt et de sédimenter plus rapidement, ce qui est visible sur les figures (36) et (37) en fin de simulation, par rapport aux figures (39) et (40) de la simulation de type continental.

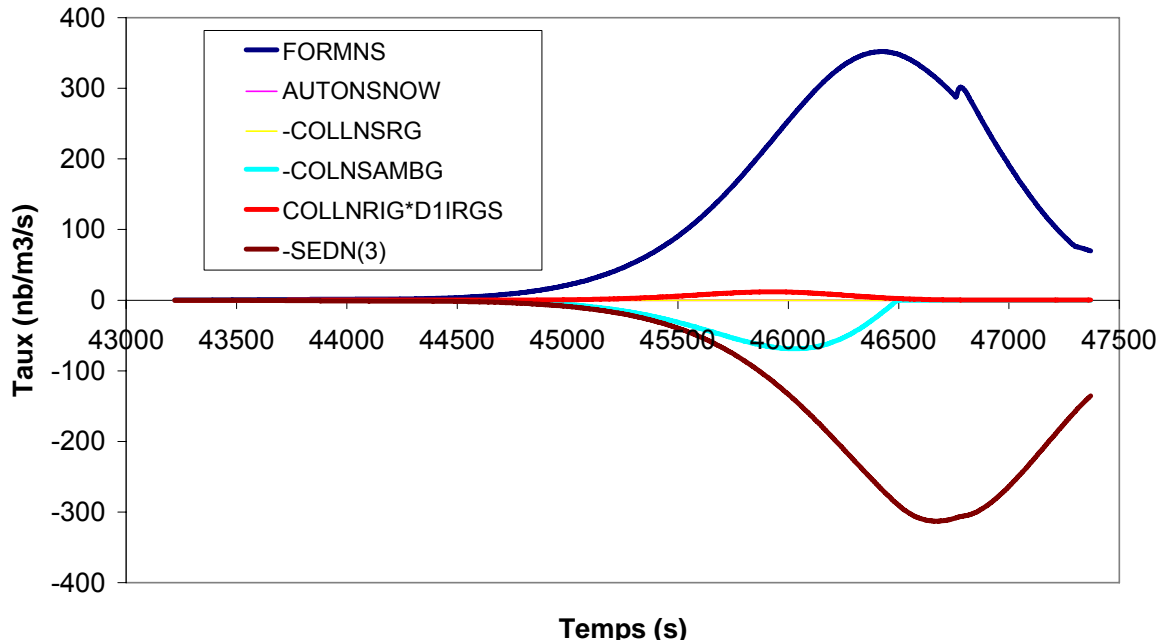


Figure 43 : Taux de production/destruction de la neige en nombre, simulation de référence.

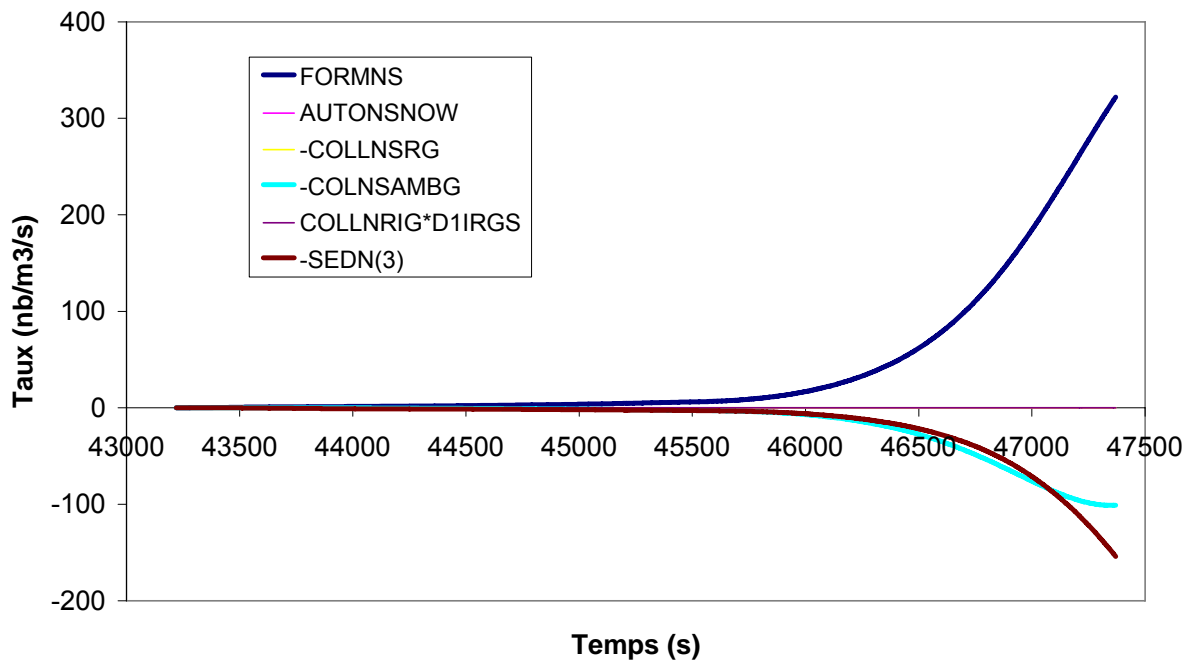


Figure 44 : Taux de production/destruction de la neige en nombre, simulation continentale.

#### 4.4. Prise en compte de la forme des hydrométéores glacés précipitants pour la masse et la vitesse de chute

La forme des hydrométéores a une incidence sur la microphysique nuageuse, ainsi, des paramétrisations de la vitesse de chute et de la masse des cristaux de glace en fonction de leur type

et de leur diamètre ont été élaborées par Locatelli et Hobbs (1974) afin de prendre en compte l'impact de la forme des hydrométéores sur la microphysique du nuage. Ces paramétrisations ont été utilisées dans le modèle tridimensionnel à méso-échelle MesoNH (Lafore et al., 1998) et représentent des agrégats densément givré de dendrites ou d'assemblages de dendrites pour la neige, et de 'Lump graupel', soit de la neige roulée dont la forme initiale n'est plus visible pour la neige roulée (Locatelli et Hobbs, 1974), les valeurs des paramètres des relations masse diamètre et vitesses diamètre sont données dans le tableau (11). Nous avons repris ces paramétrisations dans M2C2 afin de faire des tests de sensibilité de la forme des flocons de neige et de neige roulée sur la microphysique et l'évolution du nuage. La simulation utilisant ces paramétrisations sera appelée 'cristaux complexes', en dehors de la forme des cristaux, les conditions de cette simulation sont les mêmes que pour la simulation de référence.

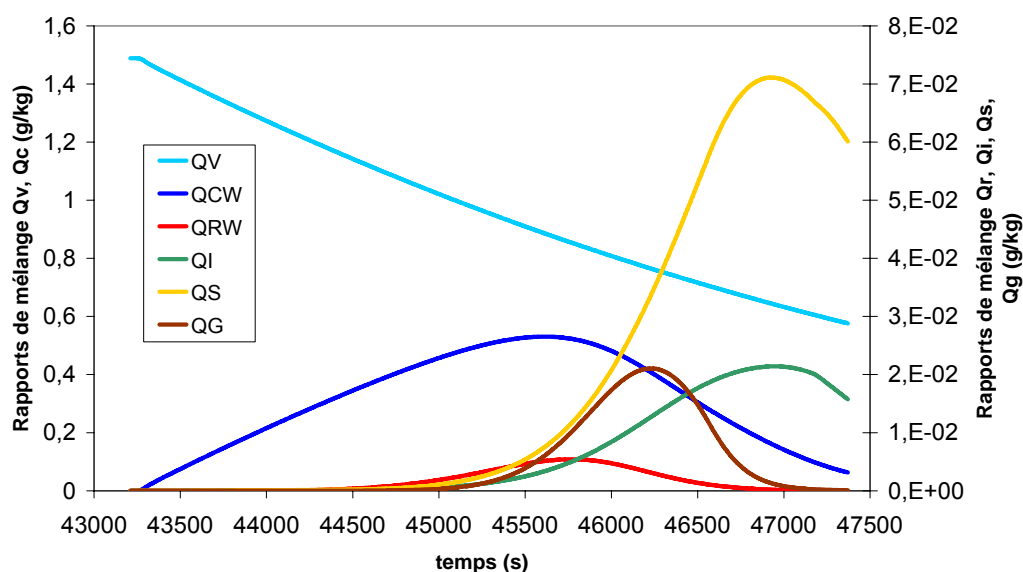


Figure 45 : Évolution des rapports de mélange, simulation cristaux complexes.

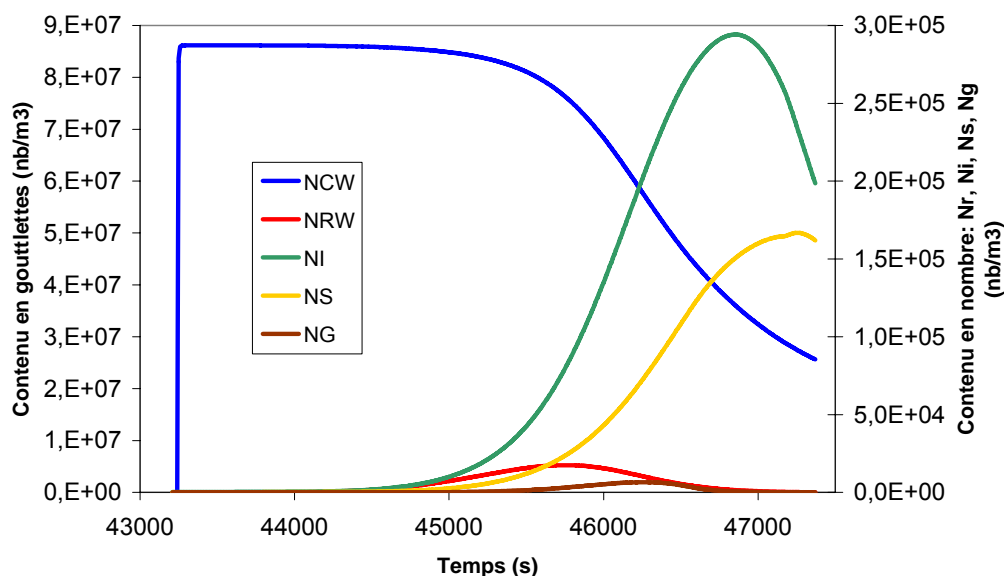
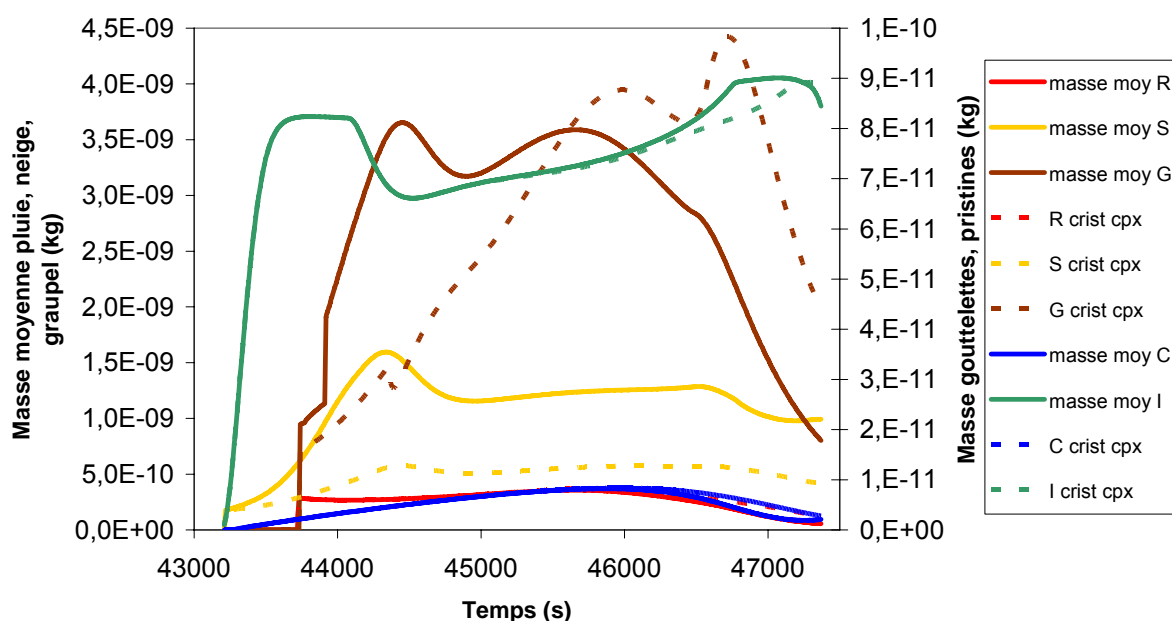


Figure 46 : Évolution des contenus en nombre, simulation cristaux complexes.

Sur les figures (45) et (46) on observe l'effet de la forme des flocons de neige et de neige roulée avec une concentration en nombre des cristaux de glace primaire et des flocons de neige environ 2 fois plus élevée que dans la simulation de référence (figure (37)). En effet, les flocons de neige formés avec cette paramétrisation sont plus petits et moins lourds que dans le cas de référence comme le montre la figure (47), ce qui défavorise le mécanisme de givrage de la neige par l'eau nuageuse. Il en résulte une diminution plus lente du nombre de gouttelettes nuageuses, entraînant la formation d'un grand nombre de cristaux de glace primaire par congélation hétérogène des gouttelettes, suivie de la formation d'un nombre plus important de flocons de neige à partir de cette glace primaire en excès. Les maxima en nombre et en contenu en glace sont décalés d'une dizaine de minutes par rapport à la simulation de référence (figures (36) et (37)).



**Figure 47 : Évolution des masses moyennes des différents types d'hydrométéores, en trait plein pour la simulation de référence et en trait pointillé pour la simulation cristaux complexes.**

#### 4.5. Conclusion

Le but de ce travail est de modéliser les processus chimiques dans les nuages en phase mixte, afin de les inclure dans des modèles de transport méso-échelle voire globaux. Un tel projet de paramétrisations dans des modèles de transport nous contraint à utiliser un schéma semi spectral et non un schéma spectral en bins, qui nécessite des temps de calcul très supérieur par le grand nombre de variables pronostiques dépendant du nombre de bins. Ce constat nous a amené à utiliser des paramétrisations de la microphysique utilisée dans la littérature. Cependant, une modélisation la plus convenable possible des interactions entre la chimie et les nuages mixtes nécessite non seulement de connaître l'évolution du rapport de mélange des hydrométéores, mais aussi d'avoir accès aux caractéristiques fines du nuage : type et taille des hydrométéores, vitesses de chute, paramètres de forme, nombre, ce qui implique l'utilisation d'un schéma à deux moments pour suivre avec beaucoup plus de réalisme les nombres et les rapports de mélange de chaque type d'hydrométéores. Conformément à la littérature récente (Beheng et al, 2006) les hydrométéores sont représentés par 5 types différents : les gouttelettes nuageuses, les gouttes de pluie, les cristaux

## Chapitre 3

de glace primaire, les flocons de neige et la neige roulée. La nucléation hétérogène des gouttelettes est paramétrée à partir de l'activation des aérosols (Abdul-Razzak et al, 1998, 2000), ce qui permet de faire la distinction entre des nuages formés dans des masses d'air d'origine maritime et continentale, et de prendre en compte l'effet des aérosols sur la chimie des nuages mixtes.

## **5. Résultats : étude de la chimie multiphase associée à la microphysique mixte**

Le but de ce chapitre est de présenter l'impact de la microphysique sur la redistribution et le lessivage des espèces chimiques par les différents types d'hydrométéores au sein des nuages mixtes. On s'intéressera particulièrement au mécanisme de rétention lors du givrage, identifié au chapitre précédant comme un des facteurs prépondérant sur le lessivage des espèces chimiques dans les nuages mixtes. On comparera l'effet de ce lessivage sur des nuages de type maritime et continental, puis on observera l'effet de la constante de Henry effective sur le lessivage et la redistribution des espèces.

### **5.1. Impact de la phase glace sur la chimie nuageuse**

Dans cette section, les résultats de plusieurs simulations sont montrés et intercomparés pour mettre en évidence :

- Premièrement, l'effet de l'apparition de la phase glace dans les processus de chimie multiphase en comparant la simulation de référence avec une simulation où les processus de microphysique froide sont artificiellement inhibés ;
- Deuxièmement, l'effet de la taille des gouttes de nuage et de pluie en comparant les cas maritimes et continentaux ;
- Enfin, l'impact de la géométrie complexe des cristaux en comparant la simulation de référence avec celle où l'on considère des cristaux non sphériques.

#### **5.1.1. Impact de la phase glace sur le pH des gouttelettes**

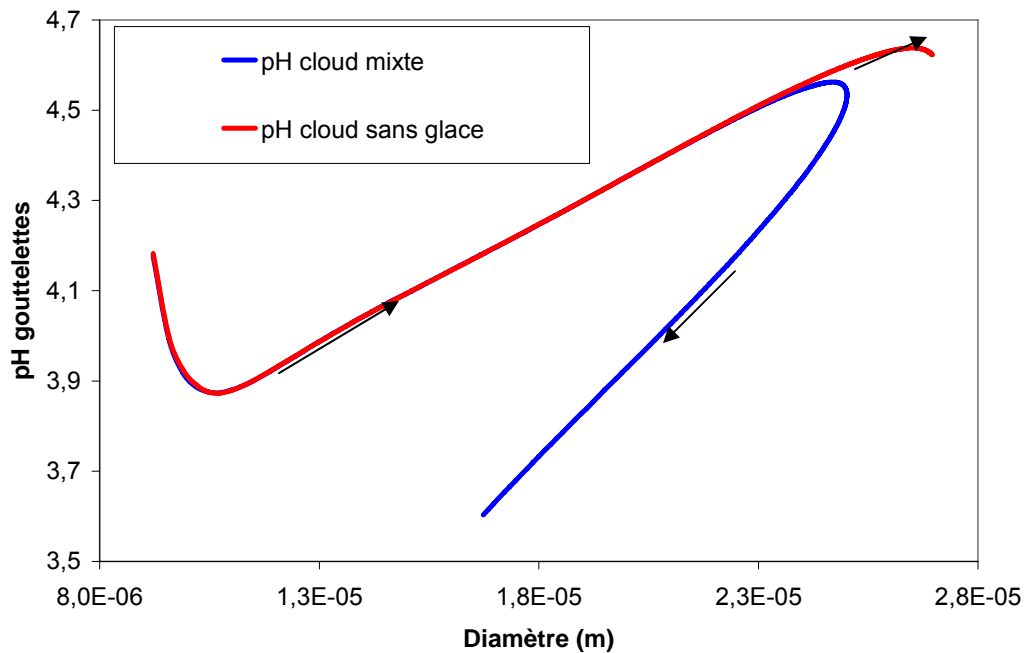
Une des propriétés chimiques les plus importantes en phase aqueuse est le pH, par son impact sur la réactivité chimique. La concentration initiale en ions des gouttelettes, à l'activation des l'aérosols, est très élevée. Dans le cas d'un aérosol acide, le pH de ces petites gouttelettes sera donc très acide, et ce pH se rapproche de la neutralité au fur et à mesure que la vapeur d'eau en se condensant fait croître la gouttelette et dilue la solution. Il est donc intéressant de visualiser le pH en fonction du diamètre ainsi qu'en fonction du temps donc de l'évolution du nuage en phase mixte.

Nous nous intéressons ici à l'effet de la prise en compte de la glace sur l'évolution du pH des gouttelettes. Pour cela nous comparons deux simulations strictement identiques la simulation de référence définit précédemment (nuage de type maritime, température minimale de  $-25^{\circ}\text{C}$ , cf. 1.3), et la simulation sans glace pour laquelle les paramétrisations microphysiques associées à la présence de la glace sont inhibés.

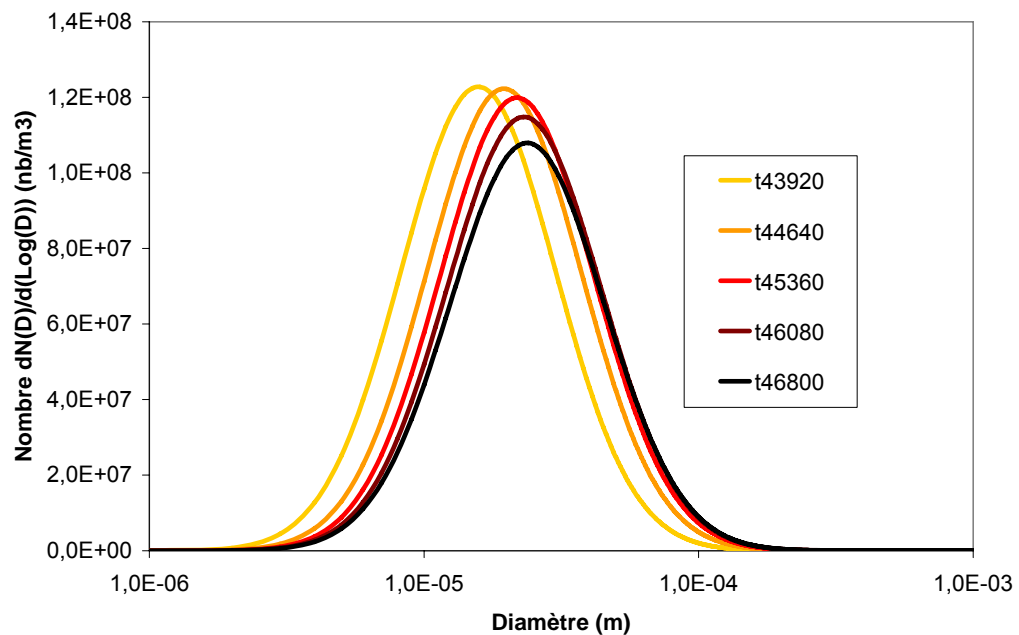
On observe lors de la nucléation des gouttelettes un temps de mise à l'équilibre du pH. La diminution rapide du pH associée à la mise en équilibre en début de simulation est identique pour les deux simulations, le mécanisme microphysique prépondérant initialement étant la nucléation des gouttelettes nuageuses, indépendant de la microphysique mixte comme on peut le constater sur la figure (48) comparant l'évolution du pH des gouttelettes pour la simulation de référence et la simulation sans glace. Ensuite on assiste à une phase de croissance des gouttelettes en même temps que leur pH augmente par dilution.

Pour la simulation sans glace, les gouttelettes croissent tout au long de la simulation (comme nous le montre l'évolution du spectre nuageux en nombre sur la figure (49) ainsi que le pH (figure (48)). Les flèches représentent l'évolution temporelle chronologique depuis la formation du nuage.





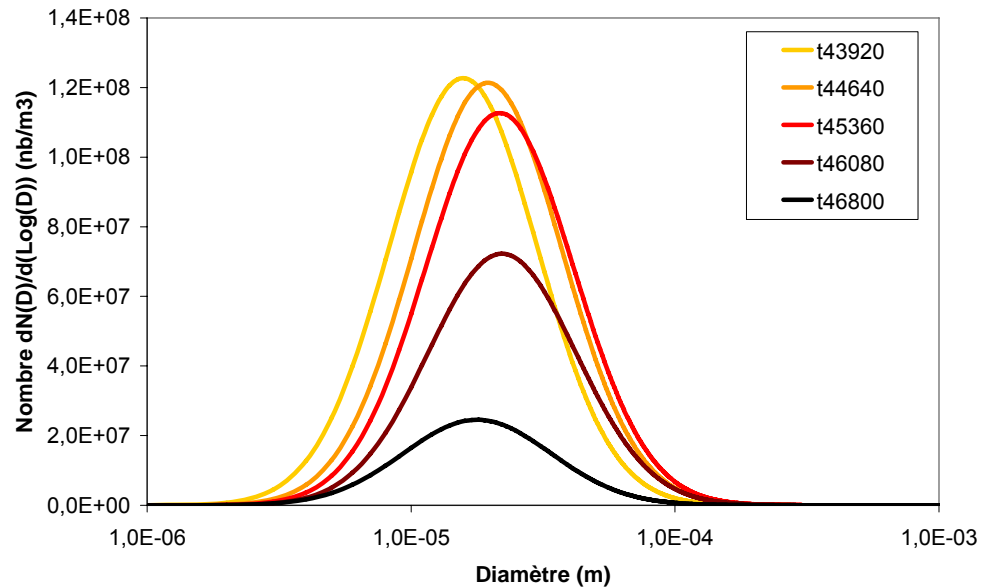
**Figure 48 : Évolution du pH en fonction du diamètre des gouttelettes, pour les simulations ‘référence’ et ‘sans glace’, l’évolution temporelle est indiquée par les flèches.**



**Figure 49 : Évolution du spectre en nombre des gouttelettes nuageuses en fonction du temps, simulation sans glace.**

Pour le nuage mixte, on observe que le pH après avoir atteint un maximum pour un diamètre moyen maximum, décroît en même temps que ce dernier (courbe bleue, figure 44). En effet l’apparition d’hydrométéores glacés de plus en plus nombreux conduit à consommer l’eau nuageuse en nombre et en rapport de mélange par collision/coalescence sur les hydrométéores glacés et en rapport de mélange par évaporation associée à l’effet Bergeron, comme nous l’avons observé dans la précédente section sur les résultats microphysiques (cf. 2.2). L’évolution des spectres nuageux en nombre en fonction du temps présentée sur la figure (50) montre la diminution

du diamètre moyen des gouttelettes associée à ces effets. L'évaporation de l'eau nuageuse entraîne une nouvelle acidification par augmentation de concentration des acides associés à l'évaporation partielle des gouttelettes.



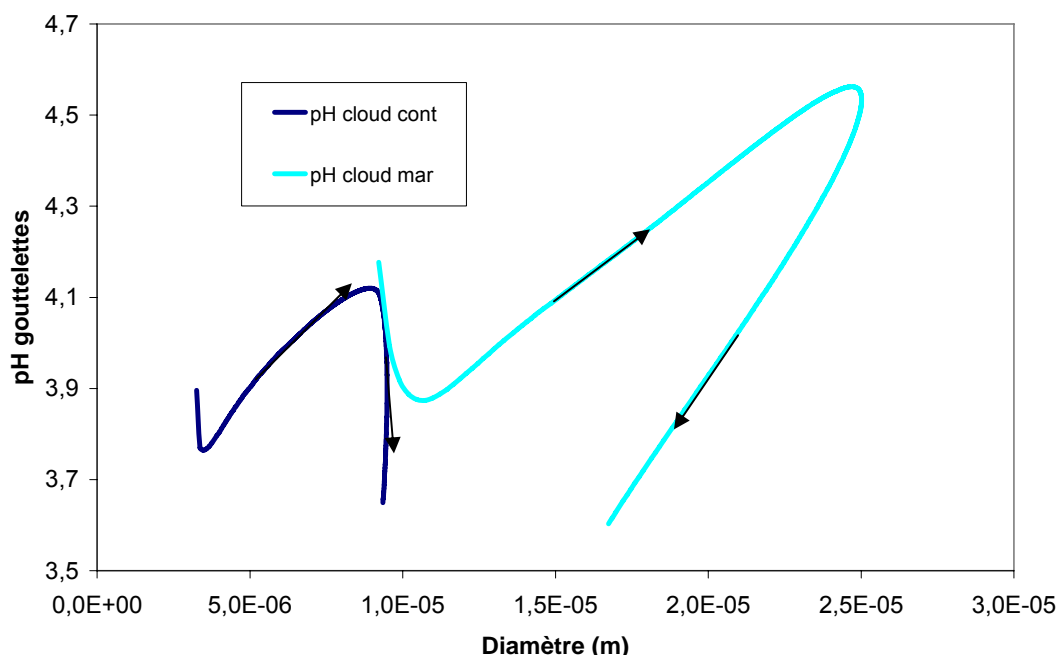
**Figure 50 : Évolution du spectre en nombre des gouttelettes nuageuses en fonction du temps, cas mixte.**

Dans la simulation sans glace, le diamètre moyen ne cesse de croître et la concentration en nombre ne diminue que très peu, alors que pour le cas mixte, la diminution conjointe du diamètre et du nombre ainsi que l'évolution de l'humidité relative (cf. 2.2) montre que la diminution de la taille des gouttelettes provient de leur évaporation, alors que la perte en nombre est en grande partie due à leur givrage sur les hydrométéores glacés.

### 5.1.2. Impact de la taille des gouttes de nuage et de pluie sur le pH

Nous comparons maintenant l'évolution du pH des gouttelettes pour un nuage de type continental, composé de très nombreuses gouttelettes de petite taille, et pour un nuage de type maritime, composé de gouttelettes moins nombreuses et plus grandes. La figure (51) présente l'évolution du pH des gouttelettes en fonction du diamètre pour les simulations maritime et continentale. On observe que le diamètre moyen des gouttelettes continentales ne dépasse pas 10  $\mu\text{m}$ , alors que pour les gouttelettes du nuage maritime il dépasse 25  $\mu\text{m}$  à son maximum.

Globalement, on constate que le pH des gouttelettes du nuage continental est plus acide que celui des gouttelettes du nuage maritime. Cela provient de la nature des aérosols à l'origine de la nucléation des gouttelettes (sulfate d'ammonium pour le nuage continental et sel pour les aérosols maritimes), mais aussi de la nature des espèces chimiques gazeuses minoritaires caractéristiques des deux types de masses d'air (tableau 8), enfin, ce pH plus faible des gouttelettes du nuage continental provient aussi de leur taille inférieure, les gouttelettes plus petites ayant toujours un pH plus faible toutes choses égales par ailleurs.

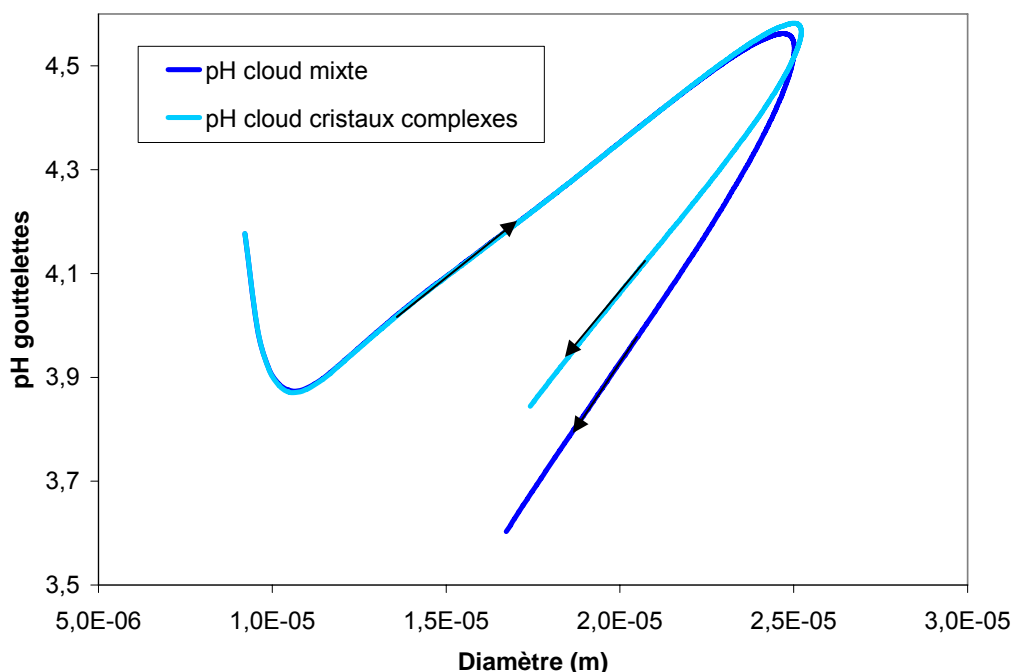


**Figure 51 : Évolution du pH des gouttelettes en fonction du diamètre, nuage maritime (bleu ciel) et continental (bleu foncé).**

Pour le pH des gouttelettes du nuage maritime, on constate qu'après une rapide mise à l'équilibre en tout début de simulation, il augmente avec le diamètre par dilution pour atteindre un maximum, puis commence à diminuer avec le diamètre des gouttelettes quand l'évaporation fait diminuer la taille des gouttelettes. Pour le nuage continental, on observe globalement le même mécanisme, cependant, en fin de simulation, le diamètre des gouttelettes ne diminue que très peu alors que le pH baisse de 0,2, l'évaporation des gouttelettes nuageuse ne s'opérant qu'en toute fin de simulation, de façon moins intense que dans le cas maritime. Le givrage devient prépondérant durant le dernier tiers de la simulation continentale, correspondant à la baisse du pH. Le dégazage associé à ce givrage transporte ces espèces chimiques en phase gazeuse, puis dans les gouttelettes restantes par transfert de masse, ce qui induit une acidification de ces gouttelettes même si leur diamètre reste presque constant.

### 5.1.3. Impact de la géométrie complexe des cristaux sur le pH

Comme on l'a vu précédemment, la prise en compte de la forme des cristaux dans les paramétrisations microphysiques modifie l'évolution du nuage. La figure (52) montre l'effet de cette paramétrisation 'cristaux complexes' par rapport à la paramétrisation de référence avec des hydrométéores sphériques. On constate que le pH suit globalement les mêmes évolutions, associées aux mêmes mécanismes prépondérants de la microphysique et de la chimie : une rapide mise à l'équilibre en début de simulation, suivie d'une augmentation du pH concomitante de l'augmentation du diamètre moyen des gouttelettes par dépôt de vapeur, et enfin, une baisse du pH en fin de simulation, lors de l'évaporation des gouttelettes au profit des hydrométéores glacés en même temps qu'une augmentation de la concentration des espèces acides dans les gouttelettes restantes par transfert depuis la phase gazeuse des espèces issues du dégazage associé au givrage.



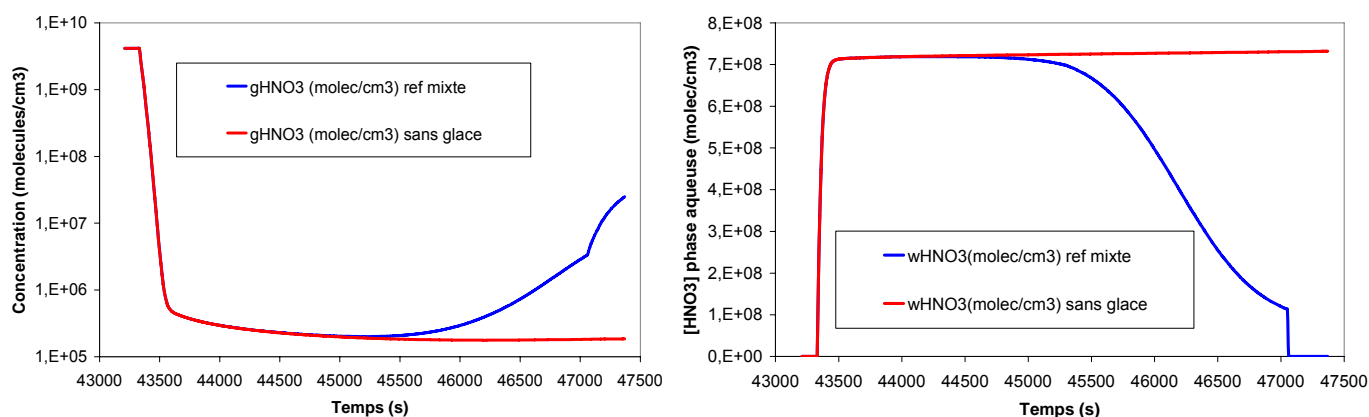
**Figure 52 : Évolution du pH des gouttelettes, simulation de référence et simulation cristaux complexes.**

On observe que pour la simulation cristaux complexes, le pH diminue moins en fin de simulation que pour le cas de référence et reste supérieur pour un même diamètre moyen des gouttelettes. Or l'observation des rapports de mélange nous montre que le contenu en eau nuageuse du nuage type 'cristaux complexes' reste sensiblement plus élevé dans le dernier tiers de la simulation que dans le cas de référence, car le givrage est moins efficace. Ainsi, le pH des gouttelettes est plus élevé dans le cas 'cristaux complexes' que 'référence' pour un même diamètre moyen car le givrage plus faible dans le cas 'cristaux complexes' limite le dégazage d'espèces chimique vers la phase gazeuse, ce qui diminue le transfert de ces espèces gazeuses vers les gouttelettes restantes et limite la baisse du pH. L'évolution du pH des gouttelettes semble donc très dépendant de l'intensité du givrage, et du coefficient qui gouverne le dégazage lors de ce givrage : le coefficient de rétention.

#### 5.1.4. Impact sur les acides forts : $\text{HNO}_3$ et $\text{H}_2\text{SO}_4$

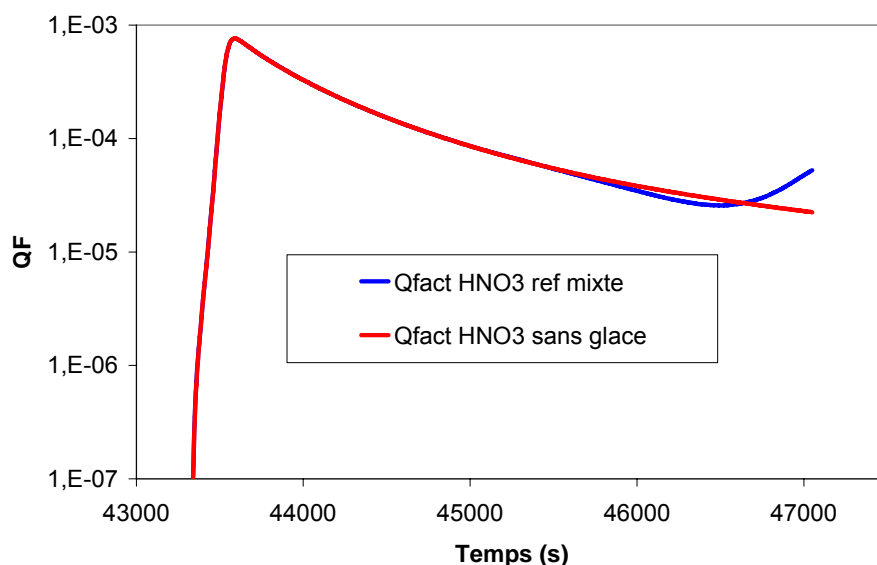
Les acides nitrique et sulfurique qui sont des acides forts ont une importance prépondérante en chimie troposphérique de par leur contribution au pH des nuages.

Les sources et les puits des espèces chimiques, dans M2C2, sont de plusieurs nature : présence dans les aérosols initiaux, réactions chimiques et photochimiques en phase gazeuse et en phase aqueuse, lessivage par les précipitations liquides, lessivage par les précipitations glacées, échanges entre les phases du nuage mixte (capture lors du dépôt de vapeur, dégazage lors du givrage et lors de l'évaporation). Les émissions directes et la perte par dépôt sec ne sont pas considérées dans ces simulations. Toute la difficulté consiste à évaluer la prépondérance des différents mécanismes microphysiques et chimiques de production/destruction d'un composé donné.



**Figure 53 : Évolution des concentrations en acide nitrique dans la phase gazeuse (gauche) et dans les gouttelettes (droite) pour la simulation de référence et la simulation sans glace.**

L'acide nitrique a la particularité d'être très soluble dans l'eau, on observe sur la figure (53) que la concentration gazeuse de cet acide est divisée par un facteur  $10^4$  après l'apparition des gouttelettes. Dans la simulation sans glace, une fois l'équilibre atteint, on observe que les concentrations en phases aqueuse et gazeuse restent quasiment constantes. Au contraire, en fin de simulation pour le cas mixte, la concentration en phase aqueuse tend à diminuer au profit de la concentration en phase gazeuse. Quelles sont les origines de ces différences de concentrations en acide nitrique gazeux et aqueux entre le nuage mixte et le nuage sans glace ?



**Figure 54 : Facteur ou coefficient de répartition entre la phase aqueuse et la phase gazeuse pour l'acide nitrique pour la simulation de référence et la simulation sans glace.**

Un des mécanismes les plus important régissant les concentrations respectives entre les phases gazeuse et aqueuse est le transfert de masse. Le coefficient de répartition entre la phase aqueuse et gazeuse,  $Q_{fact}$ , permet d'étudier l'écart à la loi de Henry des concentration en phase aqueuse et gazeuse des espèces chimiques (Chaumerliac et al., 2000). Pour rappel, le coefficient  $Q_{fact}$  (cf. 2.1.2, chapitre I) vaut 1 quand l'espèce est à l'équilibre de Henry, il est supérieur à 1 si l'espèce est sursaturée dans la phase aqueuse par rapport à la phase gazeuse, et il est inférieur à 1 dans le cas inverse. La figure (54) montre que pour l'acide nitrique, les gouttelettes sont largement sous-saturées par rapport à la phase gazeuse avec de faibles différences entre les deux simulations. L'écart à l'équilibre de Henry, équilibre thermodynamique, est dicté par des considérations

dynamiques : Le flux maximum à l'interface gaz/gouttelette provenant de la phase gazeuse est proportionnel au coefficient de diffusion du gaz dans l'air car on néglige la diffusion dans la phase aqueuse. Ainsi, il est proportionnel au rapport surface/volume de la goutte, donc les petites gouttes sont plus vite à l'équilibre que les grosses. Le flux maximum à l'interface dû à l'accommodation du gaz est proportionnel au coefficient d'accommodation : c'est à dire la probabilité qu'une molécule frappant la surface de la gouttelette reste effectivement dans l'eau. Comme précédemment ce flux est proportionnel au rapport surface/volume de la goutte, les petites gouttes sont donc plus vite équilibrées que les grosses. Le flux massique total résulte de l'interaction de ces deux flux.

Le temps de mise à l'équilibre d'une espèce gazeuse considérée sera donc grand quand :

- Le gaz est très soluble
- Les gouttelettes sont de grande taille
- Le coefficient d'accommodation est faible
- Le coefficient de diffusion du gaz dans l'air est faible.

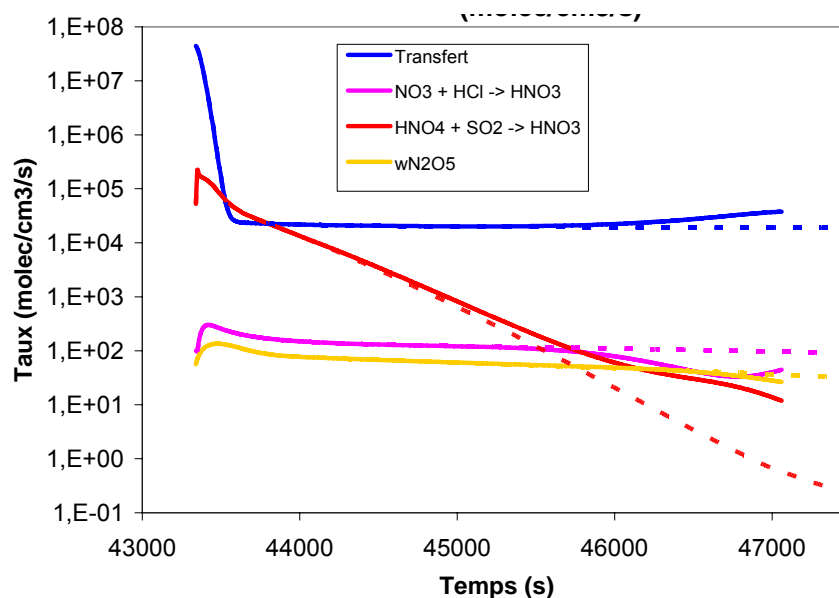
Ce temps peut atteindre plusieurs minutes pour un composé particulièrement soluble comme l'acide nitrique, et si le temps de vie moyen des gouttelettes n'est pas aussi long, l'équilibre peut ne jamais être atteint.

Voisin (1998) présente des mesures faites au sommet du puy de Dôme du coefficient de répartition  $Q_{\text{fact}}$  en fonction du pH pour de nombreux gaz troposphériques, dont l'acide nitrique. Ces mesures montrent que pour l'acide nitrique, le coefficient de répartition est de l'ordre de  $10^{-4}$  à  $10^{-7}$ . Ce coefficient de répartition, très en dessous de zéro, est en accord avec un coefficient de rétention proche de un. En effet, le givrage des gouttelettes provoque un enrichissement en soluté (ceux-ci étant bien moins solubles dans la glace que dans l'eau), cet enrichissement pouvant provoquer à son tour un dégazage de l'espèce en question dans l'atmosphère. Cependant, ce dégazage n'interviendra que lorsque l'eau sera sursaturée par rapport à l'air environnant, c'est-à-dire lorsque  $Q_{\text{fact}}$  deviendra supérieur à 1. Dans le cas de  $\text{HNO}_3$ , pour lequel la phase aqueuse est très largement sous-saturée, ceci n'a que très peu de chance de se produire. De telles espèces (avec de très fortes sous saturations en phase aqueuse) ne dégazeront donc pas pendant cette phase de solidification rapide. Remarquons que le dégazage par diffusion dans la glace peut se produire, cependant la vitesse de diffusion dans la glace a un temps caractéristique généralement supérieur au temps de vie d'un hydrométéore glacé. Il en résulte, pour de telles espèces, un coefficient de rétention proche de 1 comme c'est le cas pour l'acide nitrique.

La réactivité chimique peut aussi expliquer le fait que l'équilibre de Henry ne soit jamais atteint. En effet, si l'espèce chimique en question est produite (ou détruite) en phase aqueuse, et que le temps caractéristique de cette production (destruction) est plus petit que le temps de mise à l'équilibre, alors l'équilibre de Henry ne sera pas atteint. Audiffren et al. (1999) montrent des écarts très importants à l'équilibre selon que l'on considère ou non la dynamique de transfert de phase et la réactivité chimique en phase aqueuse. La sous saturation des gouttelettes en acide nitrique favorise donc un flux de la phase gazeuse vers la phase aqueuse. La concentration gazeuse plus élevée en acide nitrique de la simulation mixte que l'on observe sur la figure (53) pourrait donc en partie s'expliquer par le transfert de masse, la quantité de gouttelettes diminuant plus que dans la simulation sans glace, l'acide nitrique tendra à être transféré en moindre quantité dans la phase aqueuse restante. Cependant, la figure (55) décrivant l'évolution des taux de production majoritaires de l'acide nitrique dans l'eau nuageuse, montre que le transfert vers les gouttelettes est légèrement supérieur dans la simulation mixte de référence et dans celle sans glace, ce qui infirme l'hypothèse d'un transfert moins efficace dans la simulation mixte par baisse du rapport de mélange en eau nuageuse. Le coefficient de rétention de l'acide nitrique étant fixé à 1, la partie piégée par givrage est définitivement perdue pour la phase gazeuse, le cadre dynamique de la simulation ne permettant pas à la glace de s'évaporer. Il convient donc de rechercher dans les

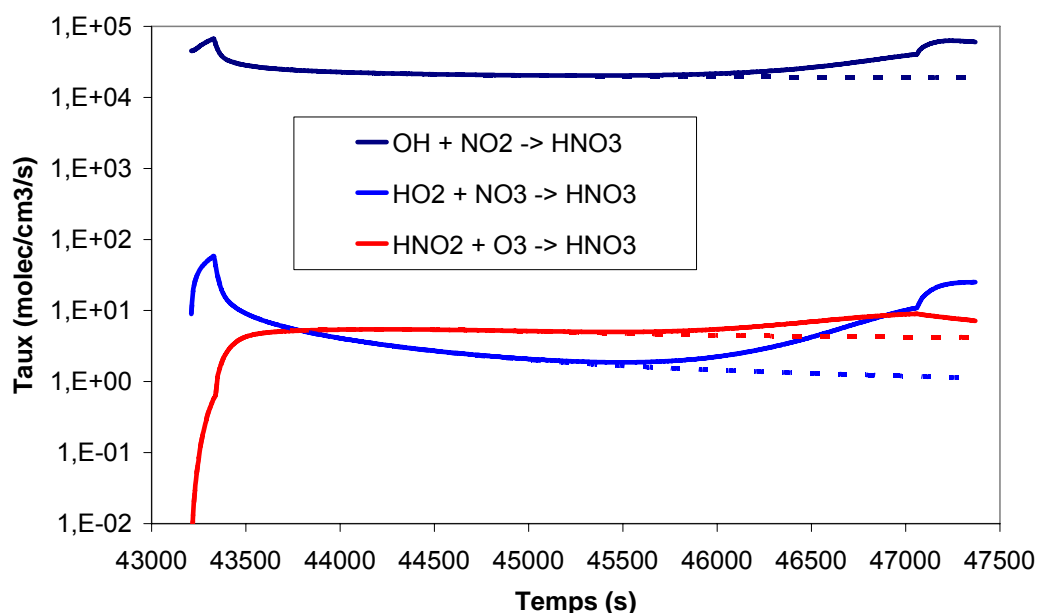
réactions chimiques la cause de cette concentration gazeuse plus élevée en  $\text{HNO}_3$  dans la simulation mixte que dans celle sans glace.

La concentration plus faible en phase aqueuse (figure (53)) pour la simulation nuage mixte s'explique par le fait que le contenu en eau nuageuse est beaucoup plus faible que dans la simulation sans glace en fin de simulation, une grande partie de cette eau étant transférée en glace.



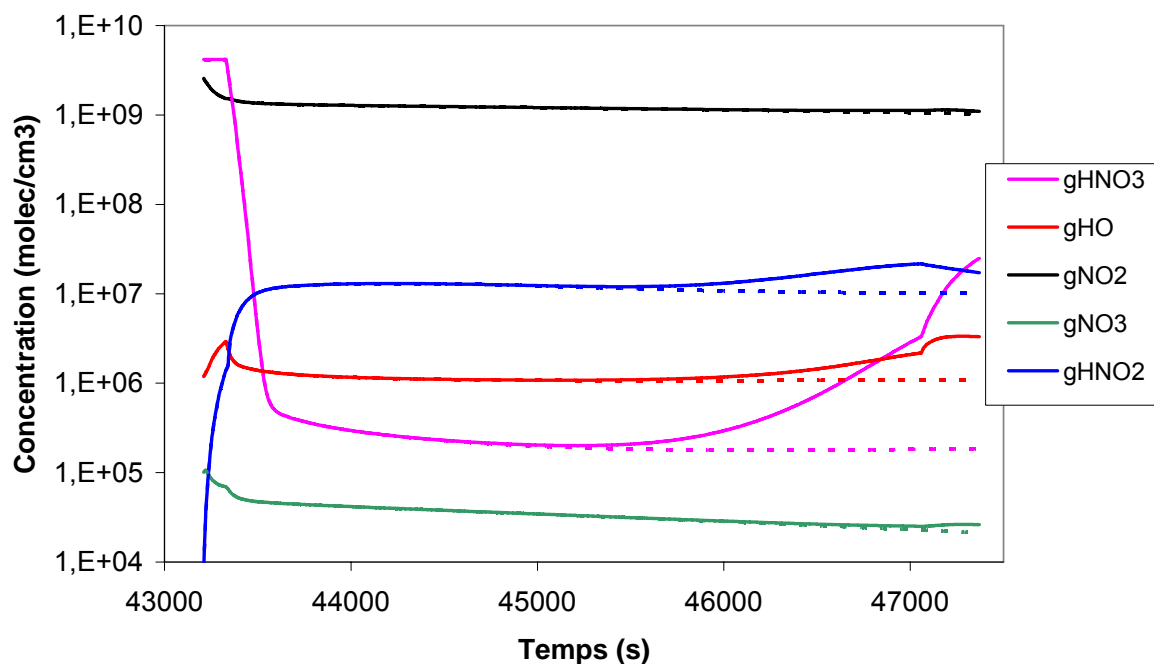
**Figure 55 : Évolution des taux de production majoritaires d'acide nitrique en phase aqueuse, en trait plein pour la simulation de référence et en trait pointillé pour la simulation sans glace. En bleu, le transfert depuis la phase gazeuse.**

Il faut donc s'intéresser à l'origine de la concentration gazeuse en acide nitrique plus élevée dans la simulation mixte par rapport à la simulation sans glace. La figure (56) ci-dessous présente les taux de production majoritaires de l'acide nitrique en phase gazeuse.



**Figure 56 : Évolution des taux de production majoritaires d'acide nitrique en phase gazeuse pour la simulation de référence en trait plein et pour la simulation sans glace en trait pointillé.**

L'oxydation du dioxyde d'azote par le radical OH est largement majoritaire, et cette production est supérieure à la fin de la simulation de référence par rapport à la simulation sans glace. Si on observe la concentration gazeuse en dioxyde d'azote et en radical OH pour les simulations de référence et sans glace, on observe que seule la concentration en OH présente une différence notable en fin de simulation, avec une concentration de l'ordre de 2 à quatre fois plus élevée dans le cas mixtes que dans le cas sans glace comme le montre la figure (57) ci-dessous.



**Figure 57 : Évolution des concentrations gazeuses de quelques espèces clés pour l'acide nitrique, simulation de référence et la simulation sans glace.**

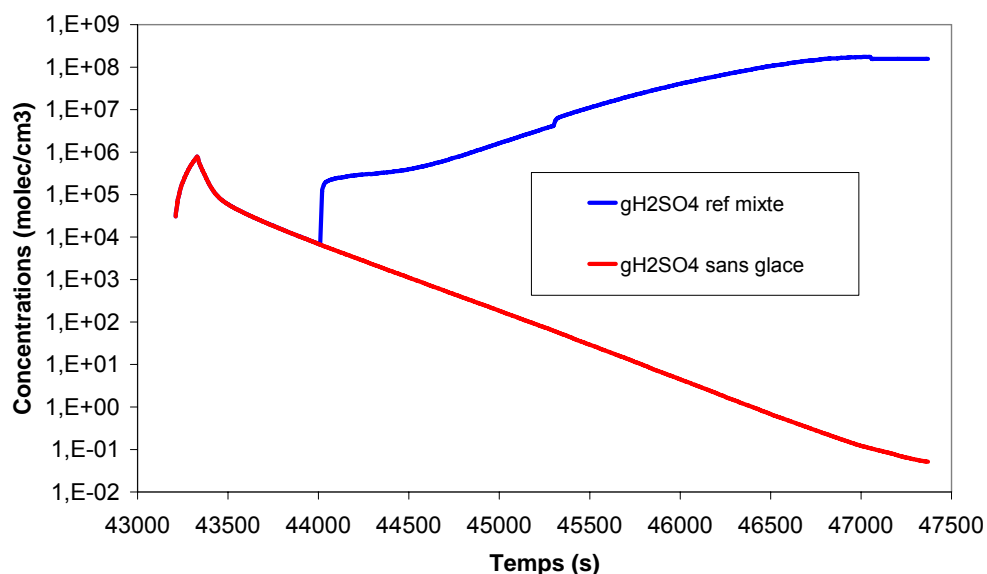


En conclusion, pour l'acide nitrique, les concentrations gazeuse et aqueuse (en mol/l) du nuage en phase mixte à l'apparition de la glace résultent en une production plus élevée en phase gazeuse depuis OH et  $\text{NO}_2$ , suivi d'un transfert plus important du fait que le nuage mixte en givrant consomme l'eau nuageuse disponible.

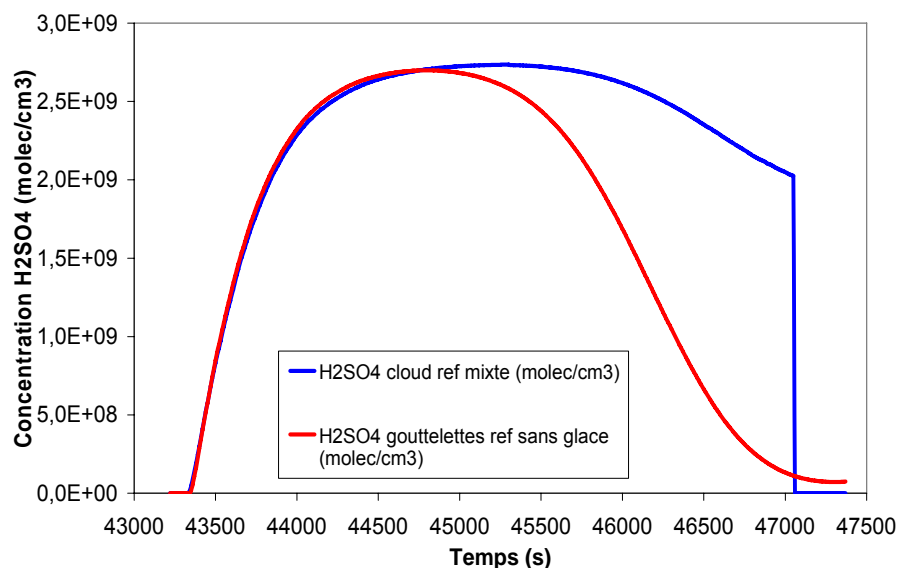
Le comportement de l'acide sulfurique est étudié maintenant et présente comme différence essentielle avec l'acide nitrique la possibilité d'un dégazage partiel pendant la phase de givrage du nuage.

En effet, le coefficient de rétention de l'acide sulfurique est de l'ordre de 0,1, suivant la gamme de température. Il est donc intéressant de suivre l'évolution de cet acide fort et de le comparer à l'acide nitrique, qui subit une rétention totale en phase glace. Les figures (58) et (59) présentent respectivement l'évolution des concentrations en phases gazeuse et aqueuse de l'acide sulfurique pour la simulation de référence et la simulation sans glace.

On notera cependant que le coefficient de rétention utilisé ici découle du choix de donner la valeur proposée par Lamb et Blumenstein (1987), sensible à la température, pour chaque espèce dont le coefficient de rétention n'est pas documenté. Comme nous l'avons évoqué en 2.2.1 chapitre II, un coefficient de rétention proche de 1 semble plus réaliste pour les acides forts très solubles. Les résultats présentés ici ont donc plus valeurs de test de sensibilité du coefficient de rétention sur l'évolution des concentrations respectives en phases aqueuses et gazeuse de l'acide sulfurique.



**Figure 58 : Évolution des concentrations gazeuses de l'acide sulfurique pour la simulation de référence et la simulation sans glace.**

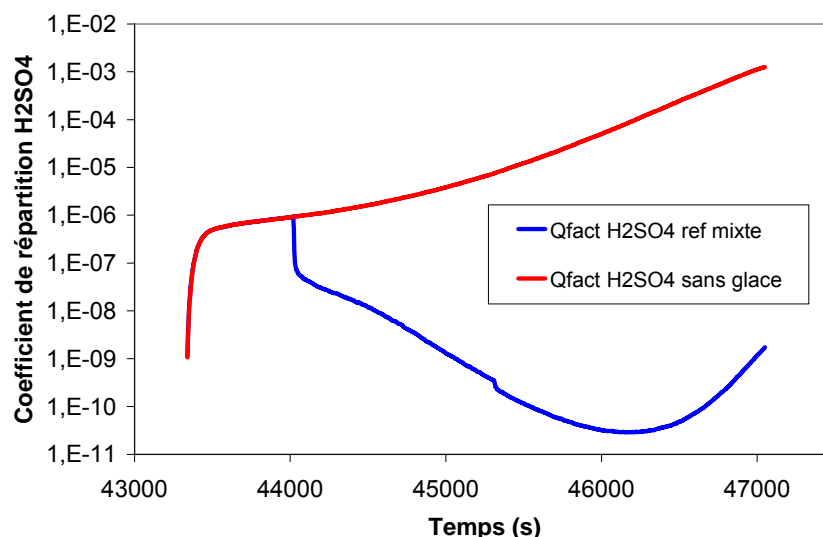


**Figure 59 : Concentrations en phase aqueuse de l'acide sulfurique (molécule/cm<sup>3</sup> d'air) pour la simulation de référence et la simulation sans glace.**

Sur la figure (58), on visualise l'effet du coefficient de rétention faible de l'acide sulfurique sur les cas mixtes. Un premier saut se produit quand la neige apparaît pour la chimie (à  $t=44020$  s pour le cas de référence), instant à partir duquel la rétention lors du givrage sur la neige est pris en compte, donc le dégazage associé. Un deuxième saut est visible lorsque la neige roulée apparaît pour la chimie. Pour la simulation sans glace, on observe une diminution forte et régulière de l'acide sulfurique gazeux.

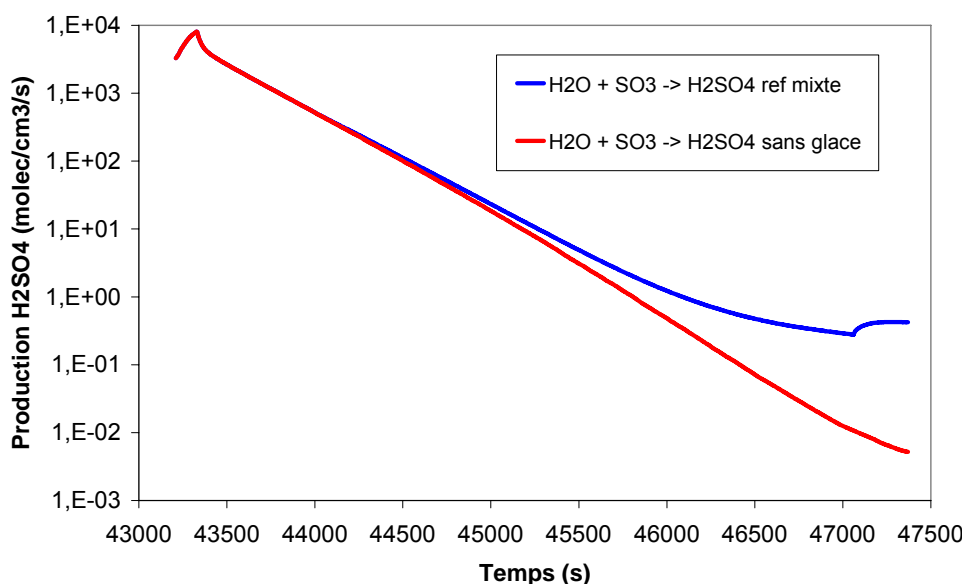
L'évolution du coefficient de saturation  $Q_{\text{fact}}$  entre la phase aqueuse et gazeuse de l'acide sulfurique nous renseigne sur l'état d'équilibre thermodynamique de l'espèce. La figure (60) montre que la concentration gazeuse en acide sulfurique par rapport à la phase aqueuse est plus élevée que ce qu'elle devrait être à l'équilibre thermodynamique. Dans la simulation sans glace, la concentration en acide sulfurique tend lentement vers l'équilibre, bien qu'il soit encore loin d'être atteint après une heure de simulation. Pour la simulation mixte de référence, on observe l'effet du dégazage associé au coefficient de rétention, comme sur la figure (58), le dégazage des gouttelettes givrantes sur la neige, puis sur la neige roulée enrichissant l'air en acide sulfurique. Le coefficient de répartition  $Q_{\text{fact}}$ , déjà en faveur de la phase gazeuse s'éloigne encore de l'équilibre, puis, en fin de simulation, la raréfaction des gouttelettes et donc de leur givrage aboutit à rendre le dégazage négligeable, donc à la remontée du coefficient de saturation.

Remarquons que la valeur du coefficient de rétention pour l'acide sulfurique utilisée dans M2C2 est une valeur estimée car aucune mesure n'est disponible actuellement pour cet acide. Le coefficient de répartition montre que, pour cette espèce, l'eau est sous saturé face à la phase gazeuse, les gouttelettes sont donc en mesure de conserver une grande partie de cet acide lors de la croissance de la glace pendant le givrage, si on suppose que l'acide est rejeté au fur et à mesure de la croissance du cristal de glace, impliquant qu'un coefficient de rétention proche de 1 semble plus réaliste. Ceci montre que le manque de données sur la rétention des différentes espèces chimiques constitue une forte limitation pour la pertinence des simulations.

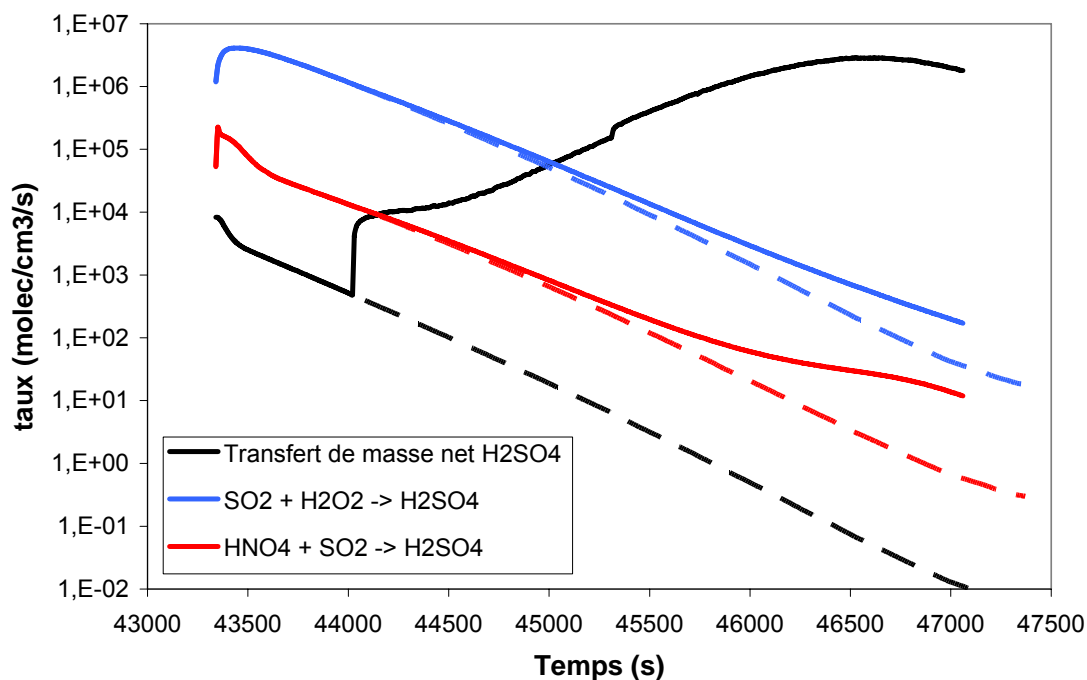


**Figure 60 : Coefficients de répartition entre la phase gazeuse et aqueuse pour l'acide sulfurique des simulations mixte et chaude**

Les réactions chimiques en phase aqueuse et gazeuse ainsi que le transfert doivent aussi être étudiés. L'observation des taux de production et destruction en phase aqueuse (figure (62)) montre que le transfert depuis la phase gazeuse est le mécanisme le plus affecté par la prise en compte de la phase glace, les autres termes majoritaires sources et puits présentant des variations bien plus faible, allant toutefois dans le sens d'une plus grande production en acide sulfurique dans le cas mixte. Pour la réactivité en phase gazeuse, La figure (61) présente le seul mécanisme chimique de production de l'acide sulfurique pris en compte dans M2C2 qui est dû à l'oxydation du dioxyde soufre par le radical OH. On observe que l'échelle est logarithmique mais la différence est trop faible pour expliquer l'écart considérable de concentration en phase gazeuse entre les deux simulations. La chimie en phase gazeuse n'explique donc pas les différences observées dans les concentrations de cet acide dans les deux phases.

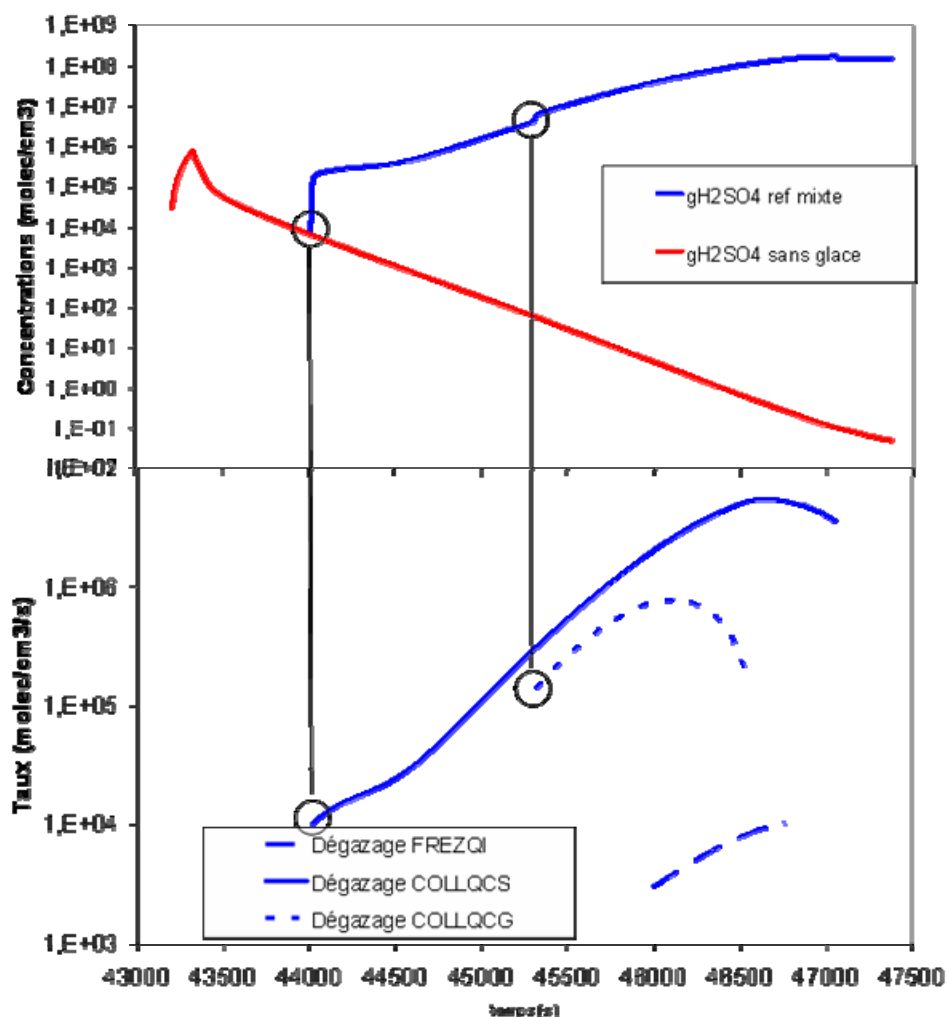


**Figure 61 : Évolution du taux de production majoritaire de l'acide sulfurique en phase gazeuse pour la simulation de référence et la simulation sans glace.**



**Figure 62 : Taux de production prépondérants en  $\text{H}_2\text{SO}_4$  dans la phase aqueuse, nuage mixte (trait plein) et sans glace (pointillées).**

Il en résulte que seule la microphysique et spécifiquement le dégazage associé au givrage peut expliquer, avec ses effets sur la chimie en phase aqueuse, les écarts observés. La figure (63) présente l'évolution de la concentration gazeuse en acide sulfurique ainsi que le dégazage lors du givrage. On retrouve en lecture directe l'effet du dégazage sur les simulations en phase mixte, avec un premier effet dû au givrage sur la neige puis un second dû au givrage sur la neige roulée.



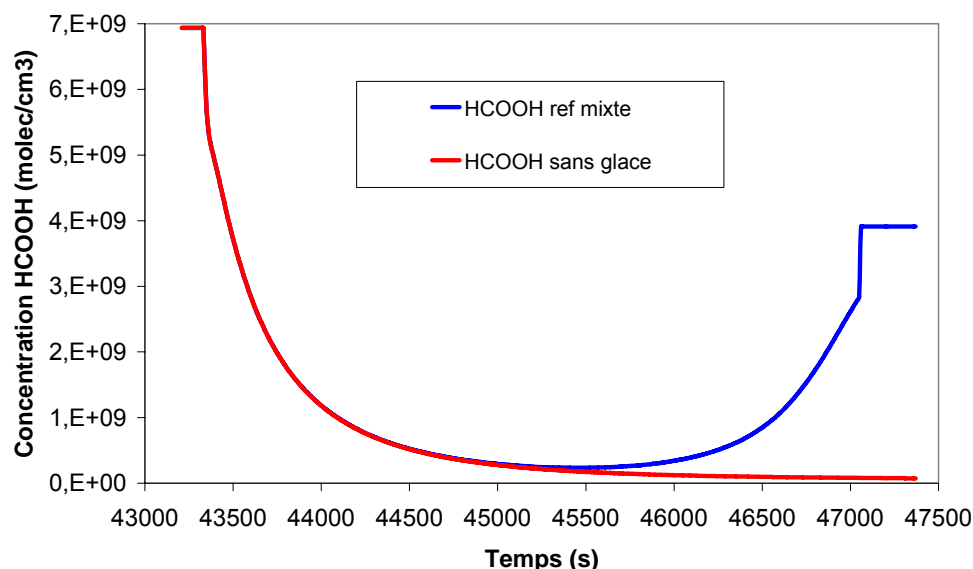
**Figure 63 : Évolution comparée du dégazage lors des phénomènes de givrage et de la concentration gazeuse en acide sulfurique pour la simulation en phase mixte de référence.**

L'origine de la surconcentration gazeuse en acide sulfurique (et l'écart encore plus important à l'équilibre de Henry effectif) lors de la simulation M2C2 nuage mixte de référence est donc le dégazage associé au givrage des gouttelettes sur la neige et la neige roulée. Suite à cela, le transfert depuis la phase gazeuse vers la phase aqueuse, ainsi que la production favorisée d'acide sulfurique en phase aqueuse explique la concentration plus élevée dans la phase aqueuse restante du cas mixte.

On remarquera que la réactivité chimique peut avoir un effet sur l'écart à l'équilibre de Henry effectif, ce qui a été établi pour certaines espèces chimiques. Les études de terrain le montrent aussi, par exemple pour l'acide formique avec une sursaturation mettant en évidence la production de cet acide faible dans le nuage (Laj et al, 1997).

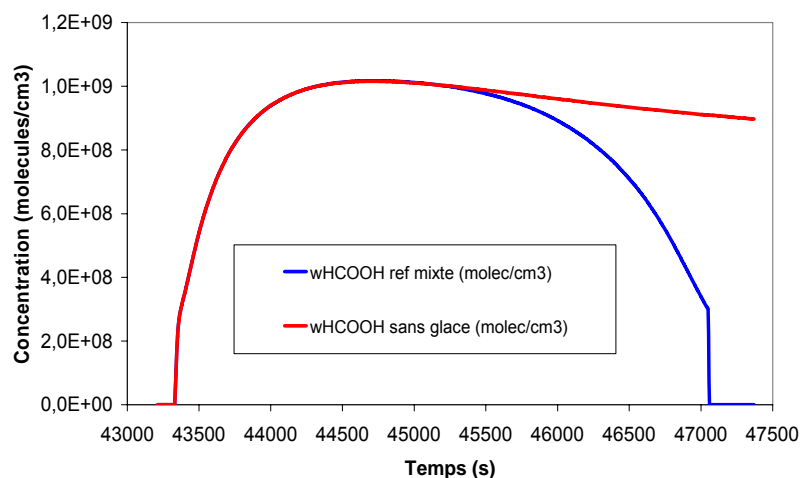
#### 5.1.5. Impact de la microphysique mixte sur l'acide formique et le radical OH

L'acide formique est l'acide carboxylique le plus simple, c'est un acide faible (dont la dissociation dans l'eau est partielle). Cette espèce est d'importance troposphérique pour son rôle dans les réactions dépendantes du pH, et c'est un composant acide majeur présent dans la pluie (Keene et Galloway, 1988). Les figures (64) et (65) présentent l'évolution des concentrations en phases gazeuse et aqueuse de l'acide formique. On observe que l'existence de la phase glace dans le nuage favorise la présence de l'acide formique gazeux



**Figure 64 : Évolution de la concentration gazeuse en acide formique pour la simulation de référence et la simulation sans glace.**

On observe également que si, globalement, la concentration d'acide formique en phase aqueuse diminue dans le cas mixte, cela est dû à la diminution plus forte du contenu en eau nuageuse dans ce cas, en effet on constate par ailleurs une augmentation de la concentration en mole par litre dans les gouttelettes restantes (non montré).



**Figure 65 : Évolution de la concentration aqueuse en acide formique (molécule/cm<sup>3</sup> d'air) pour la simulation de référence et la simulation sans glace.**

L'étude du bilan chimique en phase gazeuse pour l'acide formique dans les simulations mixtes et sans glace nous montre que les réactions en phase gazeuse (figure (66)) sont largement dominées par le transfert de masse qui constitue la voie de destruction majoritaire. Remarquons toutefois qu'en fin de simulation lors de la phase d'évaporation du nuage le transfert de masse devient une source pour la phase gazeuse depuis la phase aqueuse. Le bilan chimique en phase aqueuse montre que le transfert de masse est également prépondérant devant les réactions chimiques (figure (67)). Cependant, le bilan du transfert de masse de l'acide formique s'effectue de la phase gazeuse vers la phase aqueuse, et ce transfert est plus élevé dans le cas mixte que dans le cas sans glace, ce qui ne permet pas d'expliquer la concentration plus élevée de l'acide formique dans la phase gazeuse lors de la simulation 'nuage mixte'. Ce transfert plus intense dans le cas mixte est donc une conséquence et non une cause de la concentration plus élevée en acide formique

constaté dans la phase gazeuse du cas mixte. Si on observe le dégazage de l'acide formique par givrage des gouttelettes (figure (68)), on constate que les taux sont relativement élevés, de l'ordre de la deuxième réaction chimique prépondérante en phase aqueuse (figure (67)). De plus le dégazage s'opère lors du givrage de l'eau nuageuse sur la neige mais aussi sur la neige roulée. L'augmentation de la concentration gazeuse en acide formique trouve ainsi son origine dans ce mécanisme microphysique. Avec une concentration en phase gazeuse plus élevée, le transfert de masse vers la phase aqueuse augmente et la concentration dans la phase aqueuse restante augmente à son tour (en mole/litre).

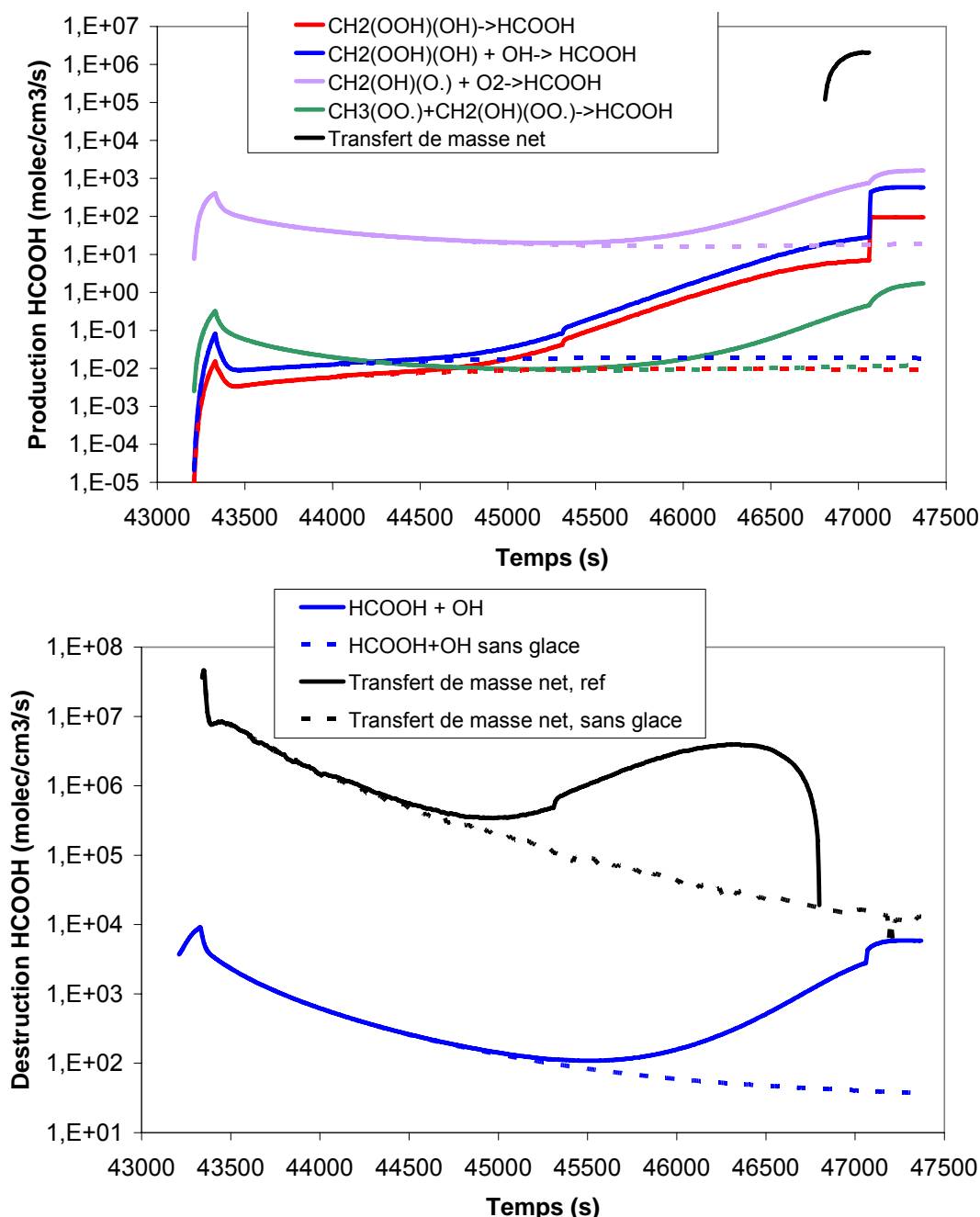


Figure 66 : Évolution des taux chimiques prépondérants de l'acide formique en phase gazeuse pour la simulation de référence (trait pleins), et la simulation sans glace (pointillés).

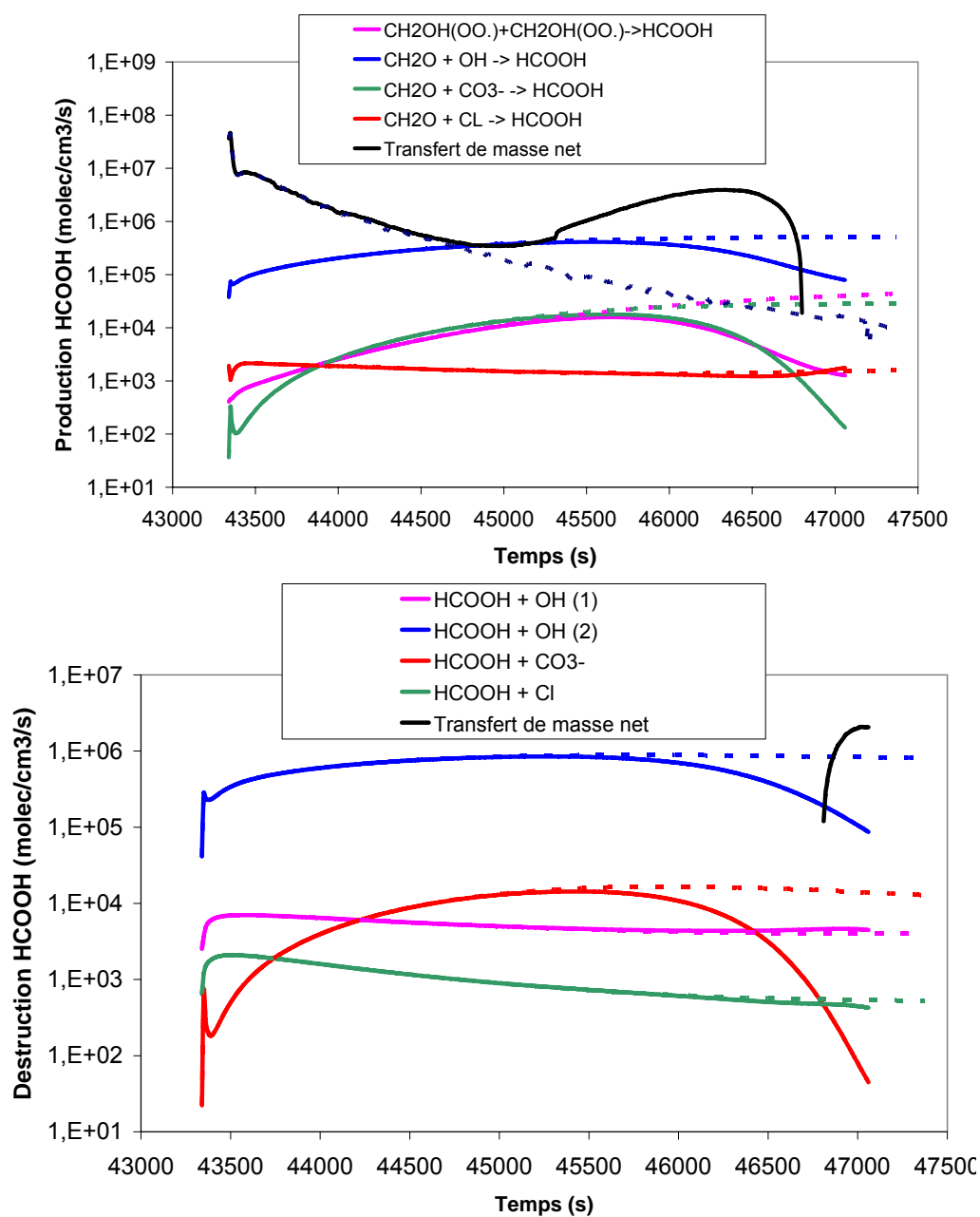
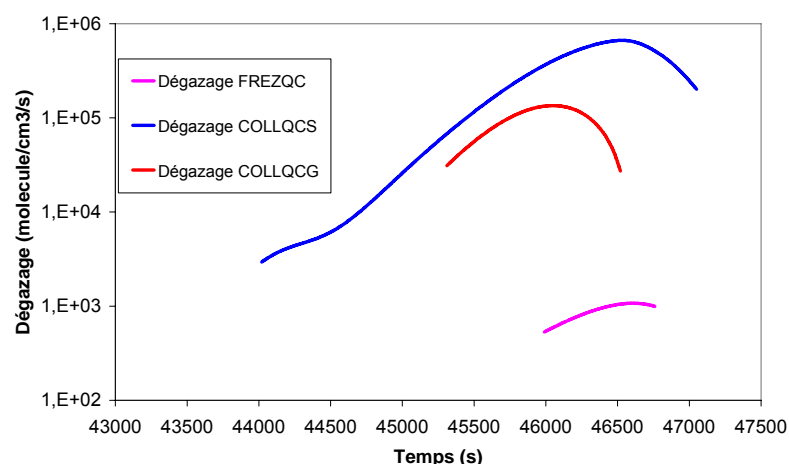


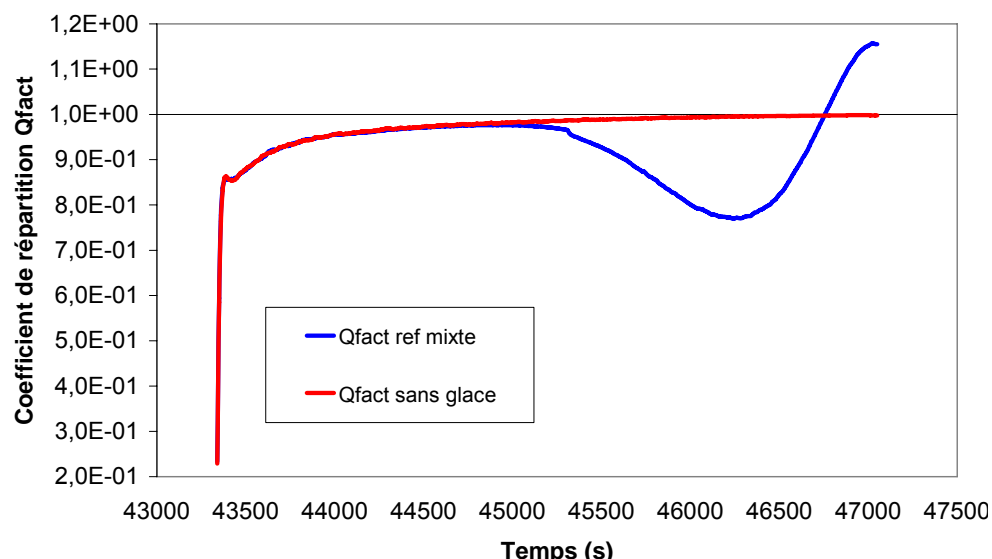
Figure 67 : Évolution des taux chimiques prépondérants de l'acide formique en phase aqueuse pour la simulation de référence, et la simulation sans glace.





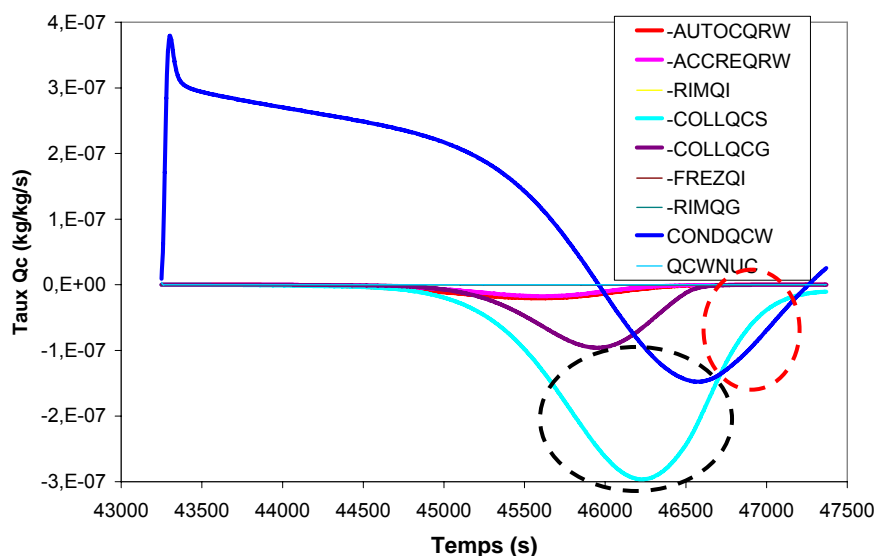
**Figure 68 : Taux de dégazage de l'acide formique des simulations mixtes pour la simulation de référence et la simulation cristaux complexes.**

L'étude du coefficient de répartition dont l'évolution temporelle est montrée sur la figure (69) nous renseigne sur l'écart à l'état d'équilibre thermodynamique de l'acide formique dans le nuage et nous permet de visualiser les mécanismes de transfert de l'acide formique identifiés ci-dessus. On observe que globalement les concentrations gazeuses et aqueuses sont proches de l'état d'équilibre (figure (69)), d'où un transfert de masse net relativement équilibré sur la figure (67). Pour la simulation sans glace, cet acide tend vers l'équilibre thermodynamique en à peine plus de 40 minutes. Dans le cas mixte de référence,  $Q_{fact}$  tend dans un premier temps vers l'équilibre thermodynamique, puis, lorsque les contenus en hydrométéores glacé deviennent élevés, on observe d'abord une baisse du coefficient de répartition (soit une sous-saturation dans la phase liquide par rapport à la phase gazeuse), suivit d'une hausse de  $Q_{fact}$  en toute fin de simulation, qui dépasse même l'unité, ce qui signifie que l'acide formique est légèrement sur-saturé dans la phase liquide par rapport à la phase gazeuse. Le dégazage de l'acide formique est paramétré en utilisant la formulation de Lamb et Blumenstein (1987), donc avec un coefficient de rétention faible. Ainsi, le givrage d'une grande quantité de gouttelettes en seconde partie de simulation explique l'augmentation rapide de la concentration gazeuse en acide formique durant la même période (figure (64)), se traduisant par une sursaturation de la concentration en acide formique en phase gazeuse par rapport à la phase aqueuse, visualisée ici par la baisse du coefficient de répartition qui reste inférieur à 1 pendant la phase de givrage intense.



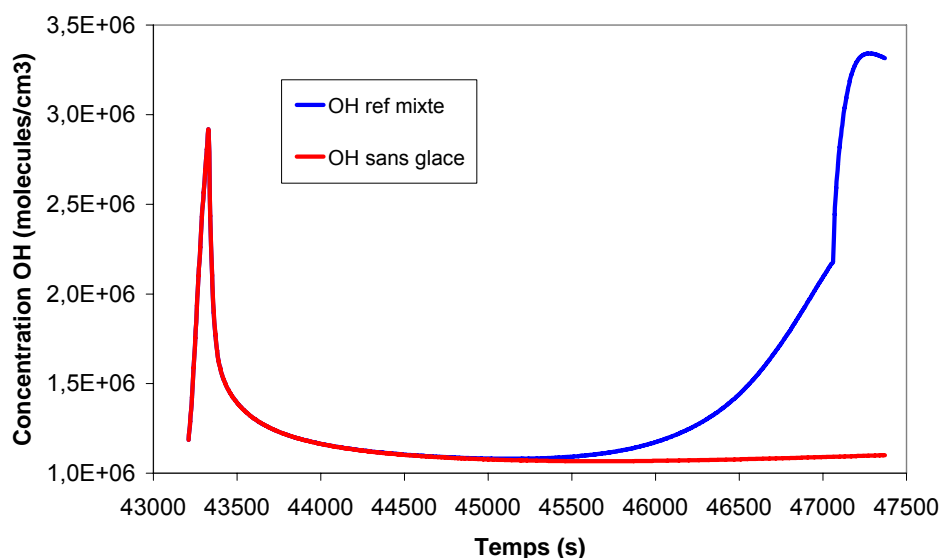
**Figure 69 : Coefficient de répartition entre les phase gazeuse et aqueuses pour l'acide formique, simulation de référence et simulation sans glace.**

En toute fin de simulation, lorsque la concentration d'eau nuageuse devient faible dans le cas mixte, le coefficient de répartition se rapproche et même dépasse l'unité, l'écart des concentrations de l'acide formique en phases aqueuse et gazeuse à l'équilibre thermodynamique s'inverse donc comme montré par l'inversion du flux de transfert de masse net (figures (66) et (67)) (sursaturation en phase aqueuse). Dans le cas mixte l'évolution des gouttelettes est gouvernée par le givrage (auquel le dégazage est associé), et l'évaporation, cette dernière favorisant une augmentation de la concentration en espèce chimique dans les gouttelettes. Comme on l'a vu précédemment, le dégazage associé au givrage fait augmenter la concentration gazeuse en acide formique, donc fait dynamiquement baisser le facteur de répartition (phase aqueuse sous saturée), c'est ce que l'on observe entre  $t=45500$  s et  $46500$  s, phase de givrage intense (cercle noir, figure 66). L'évaporation des gouttelettes, au contraire, fait augmenter dynamiquement le facteur de répartition, en concentrant les espèces chimiques dans les gouttelettes, or de  $t=46700$  s à la fin de la simulation, l'évaporation domine le givrage (cercle rouge, figure (70)), on observe donc une remontée de  $Q_{fact}$ , qui fini par dépasser l'équilibre, l'acide formique étant sursaturé dans la phase aqueuse par rapport à la phase gazeuse.



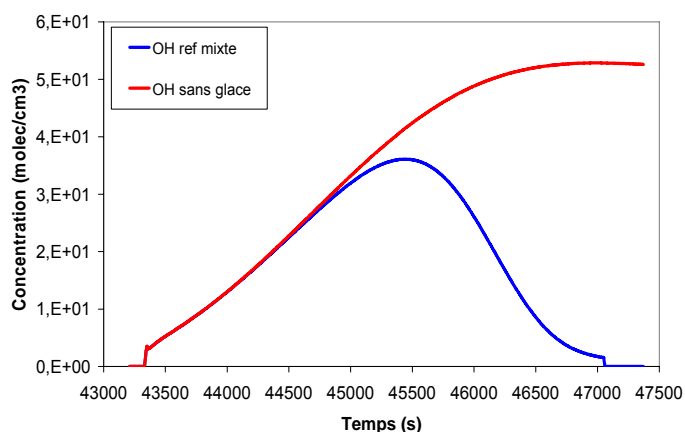
**Figure 70 : Taux microphysiques prépondérants pour l'eau nuageuse, simulation mixte de référence**

Le radical OH est l'oxydant majeur dans la troposphère, c'est donc une des espèces chimiques clé pour comprendre la chimie troposphérique. La figure (71) présente l'évolution de la concentration en phase gazeuse du radical OH, on observe que la simulation de référence donne une concentration supérieure. Cette concentration plus élevée en radical OH a pour conséquence de favoriser la formation d'acide nitrique gazeux, comme on l'a vu en analysant le cas de l'acide nitrique.



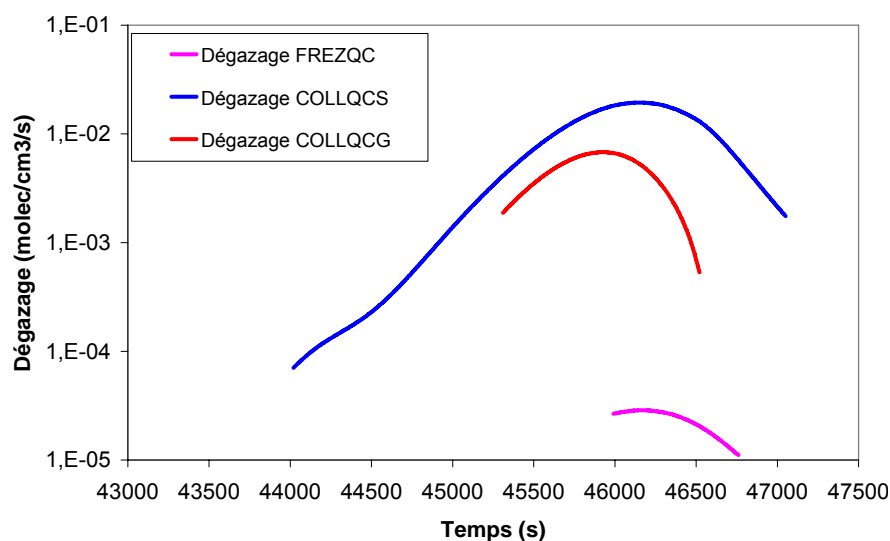
**Figure 71 : Évolution de la concentration en phase gazeuse du radical OH pour la simulation de référence et la simulation sans glace.**

La figure (72) présente l'évolution de la concentration en phase aqueuse. On observe que la simulation mixte connaît en fin de période une baisse de la concentration en radical OH corrélée à la baisse de la concentration en gouttelettes nuageuses, alors que la concentration de la simulation sans glace tend vers un pallier, tout comme le contenu en eau nuageuse.



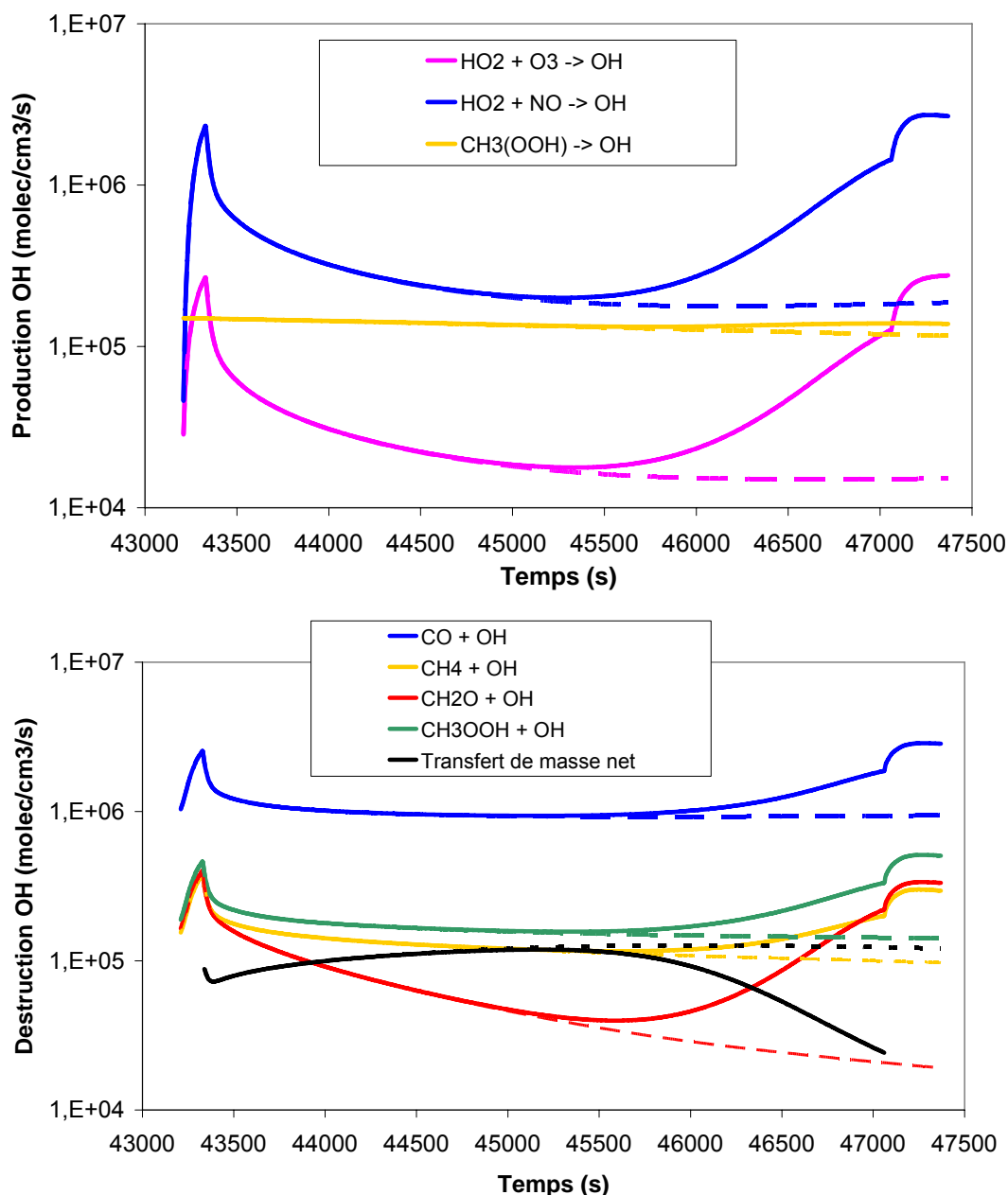
**Figure 72 : Évolution des concentrations du radical OH en phase aqueuse (molécules/cm<sup>3</sup> d'air) pour la simulation de référence et la simulation sans glace.**

En étudiant les différents termes sources et puits pour le radical OH on constate que le dégazage associé au givrage des gouttelettes reste très faible devant l'évolution de la concentration (figure (73)) et ne peut en aucun cas expliquer la hausse de la concentration gazeuse en radical OH. Rappelons que le coefficient de rétention de OH est paramétré dans M2C2 selon Lamb et Blumenstein (1987) et reste faible, donc le dégazage associé est important, cependant les concentrations respectives dans les phases aqueuse et gazeuse (figures (71) et (72)) font que ce dégazage reste infime devant les réactions en phase aqueuse, gazeuse, ainsi que le transfert de masse comme on le verra par la suite.



**Figure 73 : Dégazage du radical OH dû au givrage de l'eau nuageuse pour la simulation de référence.**

En phase gazeuse, les réactions prépondérantes sont présentées sur la figure (74). La disparition progressive des gouttelettes au profit des hydrométéores glacé de la simulation mixte favorise les concentrations gazeuses de nombreuses espèces chimiques par dégazage, et donc les réactions de production et de destruction du radical OH. L'observation directe de ces taux ne permet pas de déterminer si la réactivité chimique en phase gazeuse plus importante du cas mixte aboutit à augmenter la concentration gazeuse du radical OH.



**Figure 74 : Évolution des taux prépondérants chimiques du radical OH en phase gazeuse pour la simulation de référence, et la simulation sans glace.**

L'observation des réactions chimiques prépondérantes en phase aqueuse (figure (75)) montre que les taux de production et de destruction en phase aqueuse sont d'autant plus importants que le contenu en eau nuageuse reste élevé. On constate que les taux les plus élevés sont supérieurs à ceux que l'on observe en phase gazeuse, cependant ils ne peuvent expliquer la concentration élevée du radical OH en phase gazeuse, le transfert de ce gaz se faisant majoritairement de la phase gazeuse vers la phase aqueuse et non l'inverse (figure (74)). La concentration plus élevée en phase gazeuse constatée dans le cas mixte n'a donc pas pour origine une production en phase aqueuse suivie d'un transfert vers la phase gazeuse. Par contre, le transfert de masse, qui s'exerce toujours très majoritairement de la phase gazeuse vers la phase aqueuse, est plus élevé en fin de simulation pour la simulation sans glace à cause de la présence d'un contenu en eau nuageuse plus élevé, ce qui représente un puits net pour le radical OH gazeux dans ce cas par rapport au cas mixte. La diminution du lessivage par transfert de masse du radical OH gazeux par l'eau nuageuse explique donc l'augmentation de la concentration en OH en phase gazeuse en fin de simulation mixte, par

rapport à la simulation sans glace. Enfin, durant les dernières minutes de la simulation de référence, le nuage disparaît pour la chimie, et les espèces volatiles contenues dans les gouttelettes sont relâchées dans la phase gazeuse.

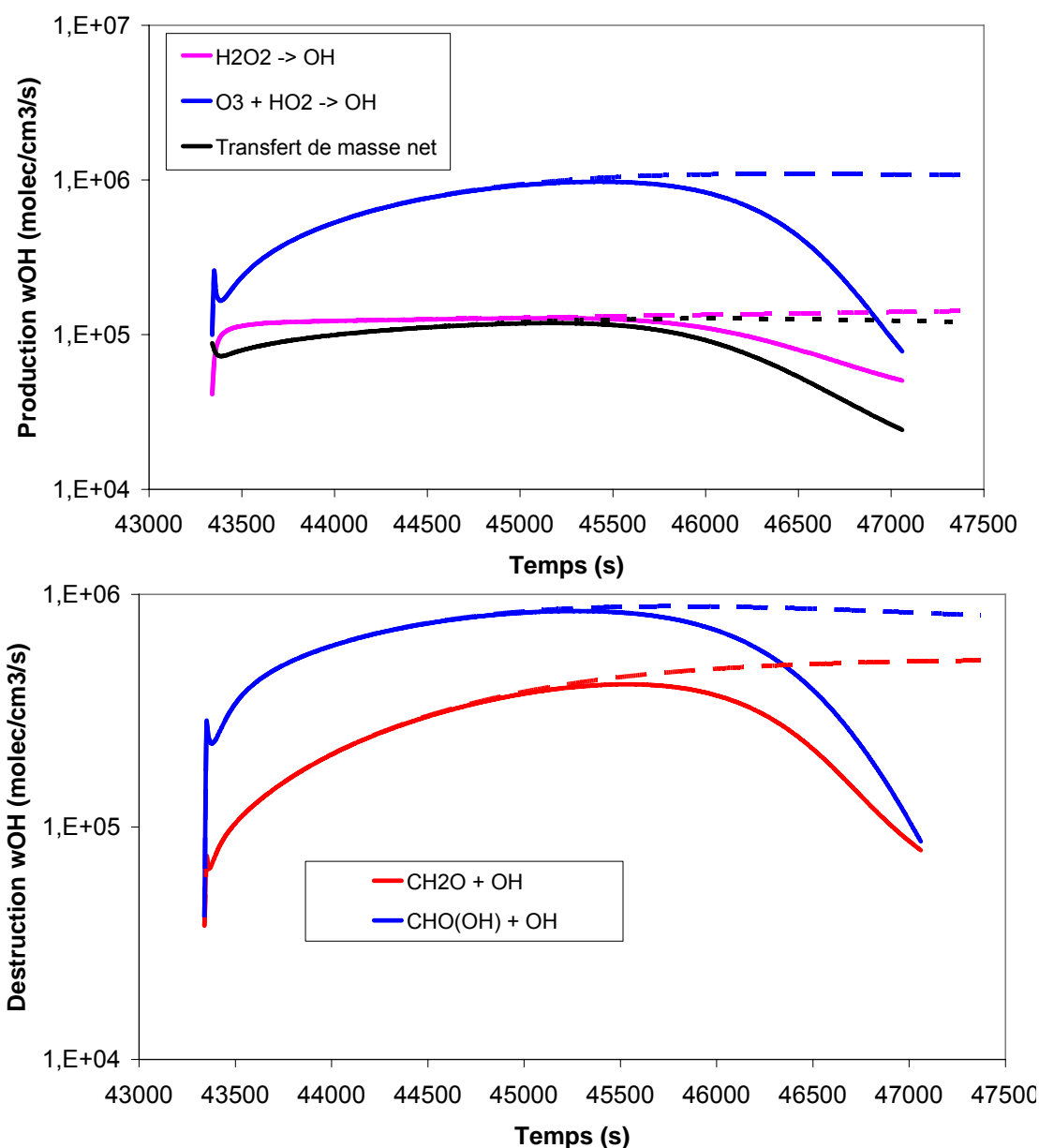


Figure 75 : Évolution des taux chimiques prépondérants de production (à gauche) et de destruction (à droite) du radical OH en phase aqueuse pour la simulation de référence (traits pleins), et la simulation sans glace (traits pointillés).

## 5.2. Impact du type de masse d'air : maritime versus continentale

### 5.2.1. Impact du type de masse d'air et de la rétention des gaz sur la redistribution des espèces chimiques par la microphysique

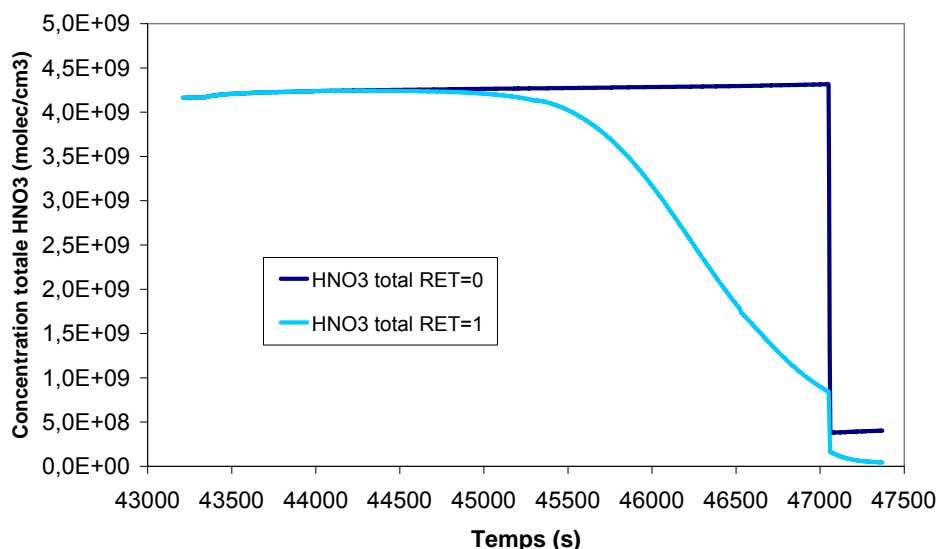
Yin et al. (2002) ont effectué des tests de sensibilité de la constante de Henry effective et du coefficient de rétention sur la concentration d'espèces gazeuses en sortie de nuage convectif, afin de visualiser l'effet de ces paramètres sur le lessivage des espèces chimiques associé aux

précipitations dans les nuages mixtes. Pour leur simulation, Yin et al (2002) utilisent un modèle axisymétrique non hydrostatique anélastique de nuage convectif développé par Reisin et al. (1996) avec microphysique mixte détaillée. Ils simulent un nuage convectif mixte d'environ 7 km d'extension verticale, dont la température à la base est de 8°C et la température du sommet est de -25°C. Yin et al. (2002) concluent qu'un lessivage important est obtenu pour les hautes valeurs de constantes de Henry effectives et les coefficients de rétention élevés, confirmant que les espèces les plus solubles et les mieux retenus dans la glace lors du givrage sont éliminées de façon plus efficace par les précipitations dans un nuage mixte. Ils remarquent que la dépendance du lessivage à ces deux paramètres dépend de leur valeur respectives: en effet pour les valeurs les plus élevées de la constante de Henry effective (espèces les plus solubles comme l'acide sulfurique), le taux de lessivage est fonction de la valeur du coefficient de rétention, ce qui signifie que pour ces espèces qui se trouvent majoritairement dans la phase liquide (du moment qu'elle existe), la constante de Henry effective n'a plus d'impact sur le lessivage. Au contraire, aux plus faibles valeurs de la constante de Henry effective et pour des coefficients de rétention élevés, l'intensité du lessivage devient presque exclusivement fonction de la valeur de la constante de Henry effective. En effet, une grande partie de l'espèce considérée restant dans la phase gazeuse, un changement de la constante de Henry effective vers plus de solubilité a un impact bien supérieur sur le lessivage qu'un coefficient de rétention plus élevé.

Yin et al. (2002) se sont aussi intéressés à l'impact de la nature de la masse d'air à l'origine du nuage sur le lessivage des espèces chimiques. Les dépendances à la rétention et à la constante de Henry effective sont de même nature pour les nuages des deux types, seule change l'intensité du lessivage, nettement moindre dans le cas continental que maritime puisque les mécanismes aboutissant à la formation de précipitations sont bien plus efficaces dans le cas maritime que continental.

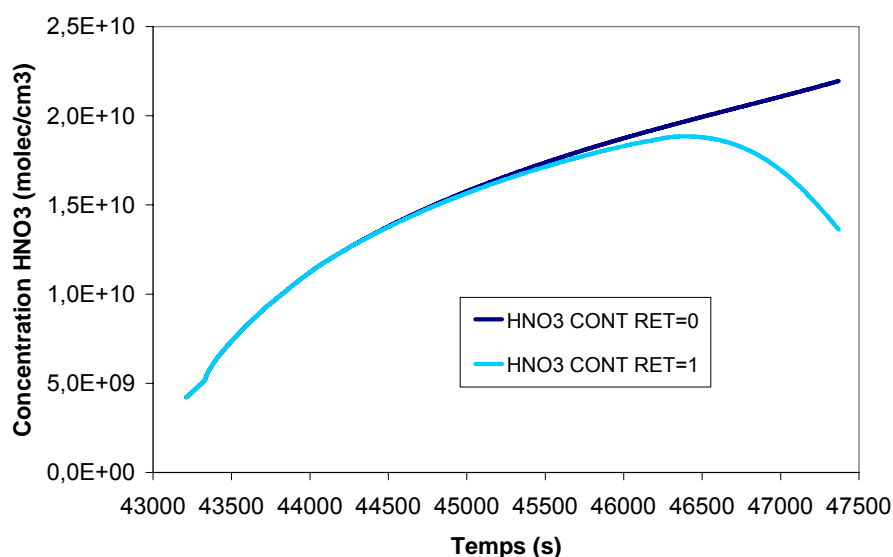
La comparaison directe avec Yin et al. (2002) des résultats de M2C2 n'est pas possible car ils étudient le lessivage dans un nuage convectif, alors que M2C2 représente l'évolution physique et chimique d'un nuage parcelle d'air. Nous avons donc choisi de comparer les résultats avec rétention variable et rétention nulle ou totale pour des espèces très solubles, moyennement solubles et peu solubles, dans un nuage maritime et un nuage continental. Ainsi, nous avons effectué avec M2C2 des simulations en modifiant le type de masse d'air (maritime ou continental), le coefficient de rétention, en choisissant certaines espèces afin d'observer l'impact du coefficient de rétention, de la constante de Henry effective et du type de masse d'air sur le lessivage des espèces chimiques.

La figure (76) ci-dessous présente l'effet de la rétention sur une espèce très soluble : l'acide nitrique, dont la constante de Henry effective dans la simulation est de l'ordre de  $10^{14}$  M/atm. Le trait bleu foncé présente l'évolution de la concentration totale en acide nitrique pendant la simulation avec rétention nulle (dégazage total lors du givrage) alors que le trait bleu clair présente la même évolution pour une rétention totale. La concentration totale est la somme de la concentration en phase gazeuse, en phase aqueuse et en phase glace. On observe que pour cette espèce très soluble, l'évolution de la concentration totale dans un nuage mixte précipitant est très dépendante du coefficient de rétention, avec une forte diminution corrélée aux mécanismes de givrage de l'eau nuageuse et à son lessivage par la neige et la neige roulée, ce qui est conforme aux résultats obtenus par Yin et al. (2002). En effet, dans le cas de la rétention totale, la concentration totale de l'acide nitrique est plus faible à cause de sa perte nette entraînée par la sédimentation de la neige et de la neige roulée.



**Figure 76 : Évolution temporelle de la concentration totale en acide nitrique, simulation de référence, avec rétention fixée à 1 et 0.**

La figure (77) présente les mêmes résultats, pour des simulations où seule la nature de la masse d'air à l'origine du nuage a été modifiée, avec des caractéristiques d'une masse d'air continentale. Comme précédemment, un coefficient de rétention élevé favorise le lessivage par les hydrométéores glacés grâce au givrage des gouttelettes nuageuses. Cependant, la baisse de la concentration totale en acide nitrique dans le cas avec forte rétention par rapport au cas avec rétention nulle reste bien plus faible que dans le cas maritime, avec une diminution de la concentration totale en HNO<sub>3</sub> entre les simulations RET=1 et RET=0 de l'ordre de 30%, contre environ 80% avec la simulation maritime. On retrouve un lessivage moins efficace des espèces très solubles dans un nuage continental par rapport à un nuage maritime, comme montré par Yin et al (2002). En effet, le nuage continental a des quantités de neige et de neige roulée beaucoup plus faible que le nuage maritime (cf. figures (36) et (39)), la perte nette d'acide nitrique par sédimentation des hydrométéores précipitants est donc moindre.

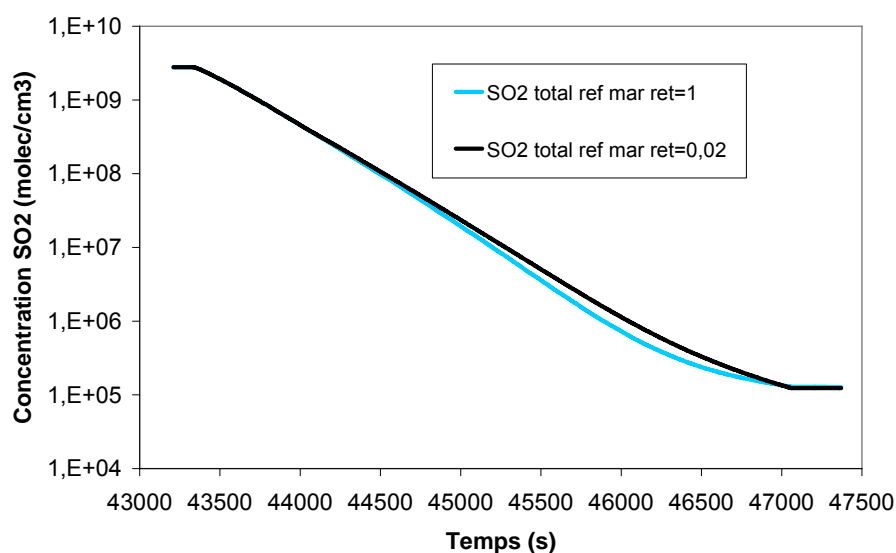


**Figure 77 : Idem figure (76), mais avec une masse d'air continentale.**

Nous choisissons maintenant une espèce dont la constante de Henry effective, c'est-à-dire la solubilité, est moindre : le dioxyde de soufre. Ce dernier a une constante de Henry effective de l'ordre de  $10^5$  M/atm dans les simulations M2C2. La figure (78) présente l'évolution de la

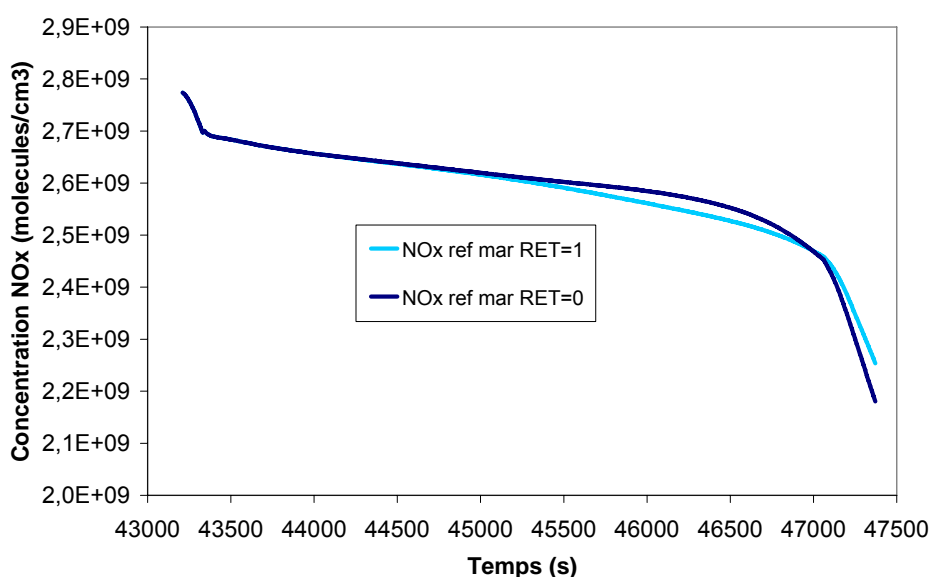


concentration totale du dioxyde de soufre durant la simulation maritime, pour une rétention de 0,02 et 1. On observe que l'écart de concentration en  $\text{SO}_2$  entre les deux valeurs du coefficient de rétention est au maximum de l'ordre de 30% (attention, échelle logarithmique) durant la période de givrage la plus intense (vers  $t=46000$  s). Si l'on compare à la figure (76), (cas maritime pour une espèce très soluble), on constate que l'écart maximum de concentration était beaucoup plus prononcé, de l'ordre de 80%. L'effet de la variation du coefficient de rétention est donc moindre sur les espèces moyennement solubles, comme le  $\text{SO}_2$ , que sur les espèces très soluble, comme l'acide nitrique, conformément aux résultats présentés par Yin et al. (2002).



**Figure 78 : Évolution temporelle de la concentration totale en dioxyde de soufre, simulation de référence, avec rétention fixée à 1 et à environ 0,02 suivant la paramétrisation de Lamb et Blumenstein (1987). Échelle logarithmique.**

La figure (79) présente l'évolution temporelle de la concentration totale des  $\text{NO}_x$  ( $\text{NO} + \text{NO}_2$ ), qui ont la particularité d'être très peu solubles, avec, dans M2C2, des constantes de Henry effectives de l'ordre de 0,1 pour  $\text{NO}$ , et 0,5 pour  $\text{NO}_2$ .



**Figure 79 : Évolution temporelle de la concentration totale en  $\text{NO}_x$ , simulation de référence, avec rétention fixée à 1 et 0.**

On observe que l'évolution de la concentration totale en  $\text{NO}_x$  est très peu sensible au coefficient de rétention, avec une concentration à peine inférieure dans le cas avec rétention fixée à 1 durant la phase de givrage intense. Cette évolution, montrant une quasi indépendance du lessivage au coefficient de rétention pour les faibles constantes de Henry effectives est en accord avec les résultats présentés par Yin et al, (2002). En toute fin de simulation, on observe une inversion entre les deux simulations, mais ceci trouve son origine dans les réactions chimiques en phase gazeuse, les gouttelettes nuageuses disparaissant pour la chimie à  $t = 47060$  s, cette évolution n'est donc pas liée aux mécanismes microphysiques.

Pour résumer ces résultats, la figure (80) présente l'évolution normalisée de la concentration totale de quelques espèces chimiques clés ( $\text{CH}_2\text{O}$ ,  $\text{H}_2\text{O}_2$ ,  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{O}_3$ ,  $\text{HCOOH}$  et  $\text{CH}_3\text{OOH}$ ) lors de la phase de givrage intense en fonction de la rétention et du coefficient de Henry effectif. La formule suivante permet de normaliser la variation de la concentration totale de chaque espèce, et de les représenter sur une même figure :

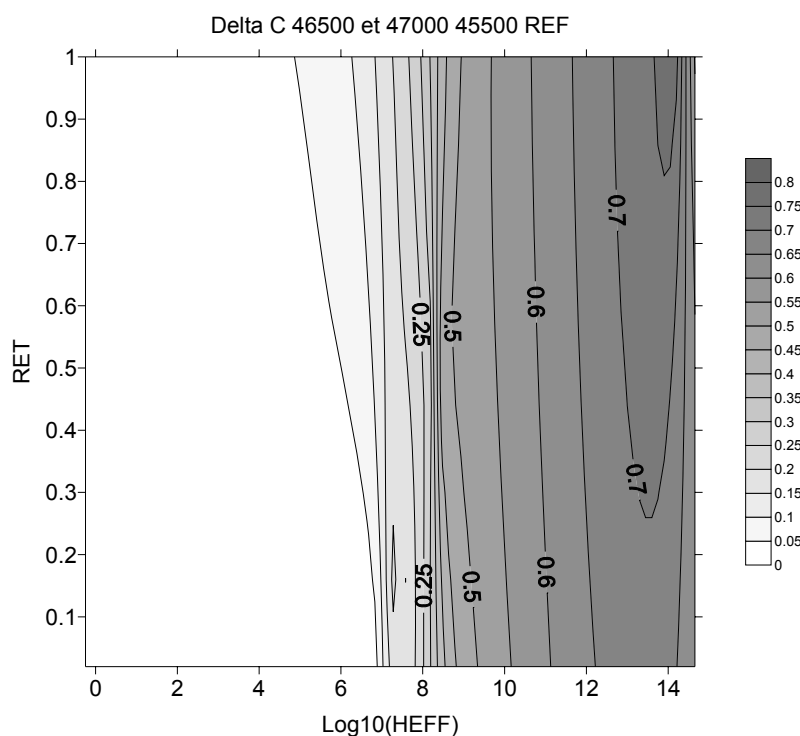
$$C_{\text{norm}} = \frac{C_{t0} - C_t}{C_t} \quad (184)$$

où  $C_{\text{norm}}$  est la concentration normalisée,  $C_{t0}$  est la concentration totale de chacune des espèce à  $t = 45500$  s,  $C_t$  est la concentration totale à  $t = 46500$  s ou à  $t = 47000$  s (ce qui correspond à la période de givrage intense).

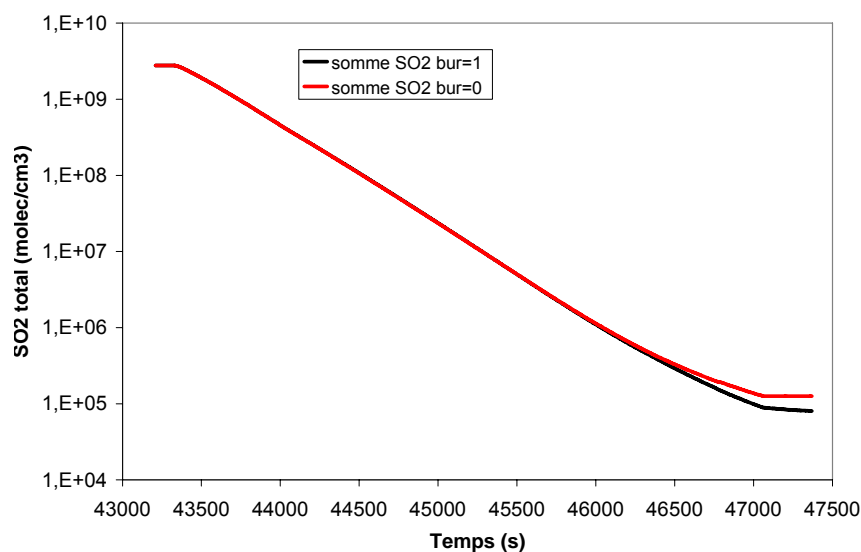
Les deux temps 't' choisis permettent de faire évoluer les coefficients de rétention et de Henry effectif, et ainsi de multiplier le nombre de point sur le diagramme.

Une valeur de  $C_{\text{norm}}$  proche de 0 signifie que la concentration totale au temps 't' est très proche de celle au temps  $t_0$ , donc qu'il y a eu peu de lessivage par sédimentation des hydrométéores, au contraire une valeur proche de 1 signifie que la concentration totale au temps t de l'espèce en question est devenue très petite par rapport à la concentration au temps  $t_0$ , donc un fort lessivage.

On observe un lessivage important associé aux valeurs élevées du coefficient de rétention et de la constante de Henry effective avec  $C_{\text{norm}}$  proche de 1, en haut à droite, alors que pour les faibles valeurs du coefficient de rétention et de la constante de Henry effective le lessivage est moindre.



**Figure 80 : Effet des valeurs du coefficient de rétention et de la constante de Henry effective sur l'évolution de la concentration totales de quelques espèces chimiques, simulation de référence.**



**Figure 81 : Évolution de la concentration totale en dioxyde de soufre dans les gouttelettes pour la simulation de référence (burial=1) et burial=0.**

Enfin, nous avons effectué une simulation pour laquelle le coefficient de burial a été fixé à zéro (pas de capture lors du dépôt de vapeur) au lieu de un pour la simulation de référence afin de tester l'effet de la capture d'espèce chimique gazeuse par les cristaux durant leur croissance par dépôt de vapeur. La figure (81) montre l'évolution de la concentration totale en dioxyde de soufre pendant les deux simulations. Le trait en rouge représente l'évolution de la concentration avec le coefficient de burial fixé à zéro, alors que le trait plein noir présente l'évolution pour la simulation de référence. On notera qu'un faible impact est perceptible, avec une concentration totale en

dioxyde de soufre légèrement supérieure dans le cas où le coefficient de burial est fixé à zéro en fin de simulation. La capture du dioxyde de soufre par burial augmente légèrement le lessivage de cette espèce par les précipitations glacées. Cependant, l'impact sur la concentration totale du dioxyde de soufre reste faible même dans ce cas limite où le coefficient de burial varie entre ces deux extrêmes. On obtient des résultats similaires pour toutes les espèces chimiques ce qui implique donc un faible effet de la capture des espèces chimiques par dépôt de vapeur lors de la croissance des hydrométéores glacés ce qui est en accord avec les résultats de Yin et al. (2002).

### 5.3. Conclusion

Le but de ce travail est d'étudier l'impact de la microphysique spécifique aux nuages mixtes sur la chimie atmosphérique. Plusieurs simulations ont été effectuées pour évaluer cet impact : la simulation de référence, maritime avec les coefficients de rétention trouvés dans la littérature, a été comparée à plusieurs types de simulations pour mettre en évidence les différents mécanismes par lesquels la microphysique des nuages mixtes joue sur la chimie. Ainsi une première simulation strictement identique à la première mais où tous les mécanismes associés à la présence de glace ont été artificiellement inhibés, permet de faire une première approche. Par la suite nous avons effectué des comparaisons de simulations en prenant en compte la géométrie non sphérique des cristaux de glace, puis avec une masse d'air continentale, enfin nous avons fait des tests de sensibilité à la rétention, en la faisant varier artificiellement, ainsi que sur la constante de Henry effective, en observant l'évolution de la concentration totale de certaines espèces chimiques clés suivant leur solubilité.

Ainsi, nous avons observé que le pH des gouttelettes tendait à plus s'acidifier dans le nuage mixte par deux mécanismes : Le premier est imputable à l'effet Bergeron, qui tend à faire s'évaporer les gouttelettes au profit des hydrométéores glacés, ce faisant, les gouttelettes diminuent de taille et leur concentration en solutés acides augmente, d'où une acidification. Le deuxième mécanisme a pour origine le dégazage associé au givrage intense des gouttelettes, en effet ce dernier favorise le relargage dans l'atmosphère d'espèces acides contenues dans les gouttelettes, puis le transfert de masse depuis la phase gazeuse vers les gouttelettes restantes fait baisser le pH.

Par un mécanisme similaire à ce dernier, la prise en compte de la forme des hydrométéores glacés modifie aussi l'évolution du pH, en modifiant l'intensité du givrage, donc le dégazage, ainsi le nuage simulé 'cristaux complexes' provoque un moindre givrage et une moindre acidification des gouttelettes restantes.

L'observation de l'évolution de quelques espèces clés dans la chimie multiphase troposphérique nous montre la diversité de l'impact de la microphysique mixte : Ainsi l'acide nitrique, totalement retenu lors du givrage, voit sa concentration augmenter en phase gazeuse non par le dégazage, mais par la réaction de production depuis OH et NO<sub>2</sub> en phase gazeuse, la concentration en radical OH étant supérieure dans le cas mixte. Pour l'acide sulfurique, on observe que le dégazage joue directement un rôle totalement prépondérant lors de la phase de givrage intense, avec une concentration gazeuse très supérieure dans le cas mixte que sans glace. On retrouve les mêmes causes pour l'évolution de l'acide formique.

Le radical OH, qui est à l'origine de la production supplémentaire d'acide nitrique en phase gazeuse pour le cas mixte, connaît une augmentation de concentration gazeuse car la diminution très prononcée de la quantité d'eau nuageuse dans le cas mixte entraîne la disparition d'un puits de première importance pour cette espèce, alors même que le dégazage de cette espèce reste négligeable, la chimie du radical OH dans la phase aqueuse étant très intense.

Enfin, les tests de sensibilité du dégazage au coefficient de rétention et à la constante de Henry effective montrent des évolutions similaires à celles présentées par Yin et al. (2002), avec, pour les constantes de Henry effectives élevées un lessivage presque exclusivement fonction de la rétention, et, pour les plus faibles valeurs de constantes de Henry effectives et forts coefficients de

rétenion, un lessivage surtout fonction de la constante de Henry effective. De même le lessivage moindre dans un nuage continental que maritime a aussi été mis en évidence avec M2C2. Par ailleurs, nous avons montré que l'effet de la capture des espèces chimiques par dépôt de vapeur lors de la croissance des hydrométéores glacés est faible.



## **Conclusion et perspectives**

L'observation des nuages dans la troposphère montre que les nuages mixtes, composés simultanément de glace et d'eau liquide, sont majoritaires. Le modèle de chimie explicite multiphase M2C2 ne permettait pas de prendre en compte cette caractéristique, pourtant prépondérante, des nuages troposphériques. Mon travail a donc consisté à compléter la microphysique nuageuse en prenant en compte les spécificités des nuages mixtes, ainsi que la chimie associée à ces mécanismes que sont la rétention et la cocondensation.

D'un point de vue microphysique, j'ai développé, en utilisant les paramétrisations existantes dans la littérature, un schéma de microphysique mixte avec 5 catégories d'hydrométéores : les gouttelettes, les gouttes de pluie, la glace élémentaire, la neige et la neige roulée. Ce schéma propose le choix du nombre de moments pour les hydrométéores glacés précipitants, un moment si on souhaite pronostiquer le rapport de mélange et diagnostiquer la concentration en nombre, et deux moments si on souhaite pronostiquer les deux grandeurs. Pour les autres hydrométéores, le schéma microphysique est à deux moments : concentrations en nombre et rapports de mélange sont pronostiqués. Les tests de sensibilité sur l'impact du calcul pronostique de la concentration en nombre de la neige et de la neige roulée dans M2C2 montrent un effet significatif, avec notamment un rapport de mélange en glace élémentaire beaucoup plus élevé dans le cas diagnostique que pronostique. En tout état de cause, le schéma à deux moments donne des concentrations en nombre plus conformes aux nuages observés que le schéma à un moment (Reisner et al., 1998), ce qui est en accord avec le caractère physiquement plus réaliste du schéma à deux moments. C'est donc cette paramétrisation à deux moments qui sera retenue dans l'étude de la chimie multiphase.

L'impact de la forme des hydrométéores glacés sur l'évolution microphysique du nuage mixte a aussi été abordé, par l'utilisation de relations masse diamètre et vitesse diamètre différentes pour des particules glacées de géométrie complexe. Les simulations montrent que l'impact de ces paramètres n'est pas négligeable, et concourt à déterminer la taille, le nombre et la quantité totale d'hydrométéores précipitants, mais aussi le temps de vie du nuage.

D'un point de vue chimique, des tests de sensibilité ont été effectués entre un nuage 'sans glace' dans lequel les mécanismes microphysiques spécifiques des nuages mixtes ont été artificiellement inhibés, et le nuage de référence où la microphysique mixte est prise en compte. Les effets de la présence de la glace sur la chimie nuageuse sont multiples, un premier effet est dû à la modification de la capacité à précipiter du nuage, donc sa capacité à lessiver les espèces chimiques solubles, un second effet provient de la modification de la distribution en taille des gouttelettes, ces dernières restent plus petites dans le nuage mixte, impliquant une baisse du pH. La disparition d'une grande partie des gouttelettes au profit des hydrométéores glacés est aussi source de modification sur la chimie multiphase, par la modification de la répartition de l'eau entre les phases. Dans les nuages mixtes, le givrage est un processus de croissance très efficace des hydrométéores glacés, d'un point de vue chimique, il est accompagné du dégazage d'une plus ou moins grande partie des espèces volatiles en fonction de la valeur de leur coefficient de rétention. L'évolution des concentrations chimiques dans les trois phases du nuage mixte est très sensible à cette rétention, ainsi, par exemple, l'acide sulfurique est très soluble mais a un faible coefficient de rétention lors du givrage, ce qui aboutit à faire augmenter sa concentration en phase gazeuse dans le nuage mixte par rapport au nuage 'sans glace'. Les tests de sensibilité effectués avec M2C2 montrent que le lessivage est d'autant plus efficace que la constante de Henry effective, et le coefficient de rétention sont élevés. D'une manière générale, l'effet de la rétention s'exerce plus ou

## Conclusion

moins sur toutes les espèces modifiant ainsi l'ensemble de la chimie multiphase. Enfin, des tests de sensibilité effectués sur la cocondensation montrent qu'elle a un impact négligeable par rapport au givrage dans les conditions de nos simulations.

Les perspectives d'améliorations du modèle M2C2 sont nombreuses, tant sur la microphysique que sur la chimie. D'un point de vue microphysique, le schéma pronostique à deux moments pourra être testé avec une grande variété de formes pour les hydrométéores glacés, et de conditions météorologiques. Le schéma microphysique pourrait aussi être porté à trois moments, développé sur le principe de celui de Milbrandt et Yau (2005), prenant en compte la réflectivité radar, ce qui permettrait de mieux contraindre la microphysique, ainsi que de faciliter la comparaison avec les mesures RADAR.

D'un point de vue chimie, il sera intéressant, dans un premier temps, d'exploiter pleinement les possibilités offertes par les simulations 'nuages mixtes'. L'élaboration de simulations plus réalistes, basées sur des trajectoires calculées par les modèles méso-échelles, et sur les mesures *in-situ* des caractéristiques microphysiques et chimiques des aérosols et des masses d'air permettront de comparer le modèle à la réalité des mesures, avec l'opportunité de comparer les résultats des simulations aux mesures effectuées par le LaMP au sommet de Puy de Dôme. La chambre contrôlée AIDA permettrait d'autres possibilités de comparaisons, notamment en offrant des cas physiquement et chimiquement simplifiés par rapport aux mesures *in-situ*. La réactivité chimique à la surface des hydrométéores glacés ne semble pas constituer une voie importante de la chimie multiphase aux températures troposphériques, à cause notamment du temps de vie réduit des hydrométéores devant ce type de réactions chimiques. Ce dernier point devra cependant être vérifié sur un cas simple.



## **Annexe 1 : Impact du changement de distribution de la pluie sur un nuage chaud.**

Avant d'étendre le schéma microphysique de M2C2 à la phase mixte, un premier travail a consisté à modifier la microphysique de la pluie, incluse dans M2C2 en utilisant la nouvelle distribution des gouttes de pluie selon une distribution gamma généralisée plutôt qu'une distribution log-normale. Dans la suite nous décrirons donc les processus de formation et de collection des gouttes qui sont affectés par ce changement. Les tests effectués utilisent une simulation de nuage orographique d'une durée de vie de 40 minutes, composé d'une ascendance de 20 minutes à 0,4 m/s de 915 m à 1465 m d'altitude, suivie d'une descente symétrique. La température varie de 1,5°C à -3°C. On peut remarquer que cette simulation correspond à un nuage orographique simplifié au dessus du Puy de Dôme.

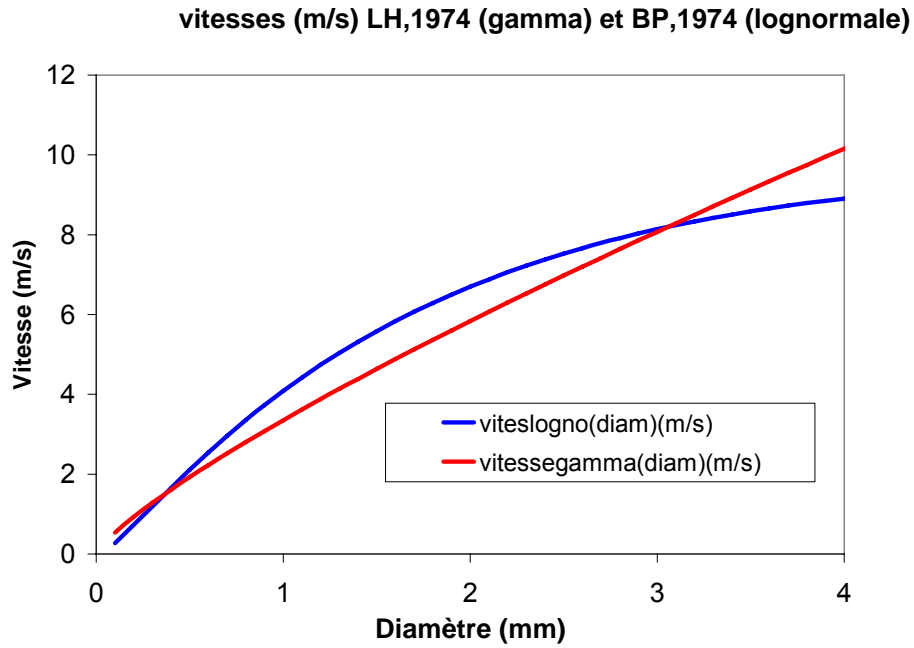
### **Autoconversion**

L'autoconversion est le mécanisme de production de gouttes de pluie par collection entre deux gouttelettes nuageuse, il est à noter que c'est le processus 'nuage chaud' qui initie la formation de la pluie. L'autoconversion ne fait appel qu'à la distribution des gouttelettes nuageuses, aucune modification n'ayant été apportée à la distribution de cette catégorie, l'autoconversion n'a pas été modifiée dans M2C2.

$$\begin{aligned} \left( \frac{\partial Q_{rw}}{\partial t} \right)_{autoc} &= AUTOCQRW = - \left( \frac{\partial Q_{cw}}{\partial t} \right)_{autoc} \quad \text{en kg}_{\text{pluie}}/(\text{kg}_{\text{air}} \cdot \text{s}) \text{ et en } \text{kg}_{\text{cw}}/(\text{kg}_{\text{air}} \cdot \text{s}) \\ \left( \frac{\partial N_{rw}}{\partial t} \right)_{autoc} &= AUTOCNRW \quad \text{en nombre}_{\text{pluie}}/(\text{m}^3 \cdot \text{s}) \\ \left( \frac{\partial N_{cw}}{\partial t} \right)_{autoc} &= -AUTOCNCW \quad \text{en nombre}_{\text{cw}}/(\text{m}^3 \cdot \text{s}) \end{aligned}$$

### **Accrétion**

Le mécanisme d'accrétion est celui qui permet de faire grossir les gouttes de pluie par collection de gouttelettes nuageuses sur les gouttes de pluie. La distribution des gouttes de pluie ayant été modifiée ainsi que la paramétrisation de leur vitesse de chute, l'accrétion s'en trouve modifiée. En effet, la paramétrisation de la vitesse de chute des gouttes utilisée jusqu'à présent dans M2C2 selon Berry et Pranger. (1974) utilise une paramétrisation complexe du nombre de Reynolds en fonction du diamètre, or le théorème des moments associé à l'utilisation de la distribution Gamma généralisée ne permet pas une telle paramétrisation de la vitesse, nous avons donc utilisé la relation masse diamètre donnée par Locatelli et Hobbs (1974), paramétrisation également utilisée dans le modèle météorologique MM5 par Reisner et al. (1998). La figure (82) ci-dessous présente la vitesse des gouttes de pluie en fonction du diamètre pour les deux types de paramétrisation de la vitesse.



**Figure 82 : Vitesse de chute des gouttes de pluie en fonction de leur diamètre pour une représentation du spectre des gouttes de pluie par une distribution log-normale et par une distribution gamma généralisée.**

Pour calculer l'accrétion, On utilise la paramétrisation de Berry et Reinhardt (1973) :

$$\left(\frac{\partial Qr}{\partial t}\right)_{accr} = \rho_a Qr Qc B_{accr}(D_{pr}, D_{mc}) \quad (A1)$$

Avec

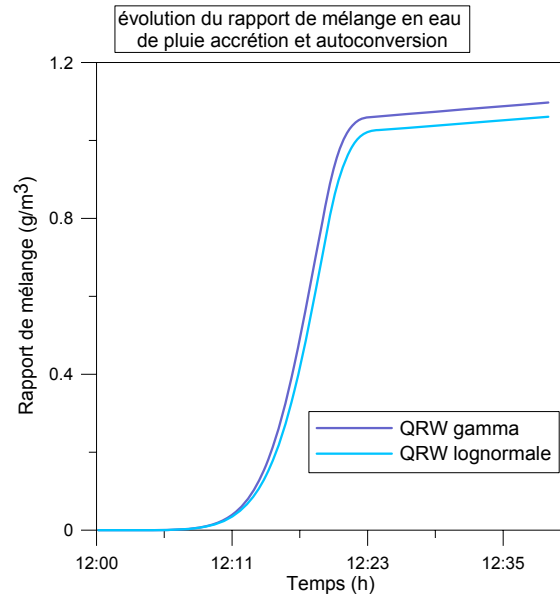
$$B_{accr}(D_{pr}, D_{mc}) = \frac{K(D_{pr}, D_{mc})}{m(D_{pr})} = \frac{\frac{\pi}{4}(D_{pr})^2 (V(D_{pr}) - V(D_{mc})) \gamma_c^2(D_{pr}, D_{mc}) E(D_{pr}, D_{mc})}{m_r(D_{pr})} \quad (A2)$$

Où K représente le noyau de collection,  $D_{pr}$  représente le diamètre de la masse prédominante de la pluie,  $D_{mc}$  représente le diamètre de la masse moyenne des gouttelettes, définis précédemment (cf. 1.2.2, chapitre 2), E est l'efficacité de coalescence,  $m(D_{pr})$  la masse prédominante,  $\gamma^2$  représente le coefficient d'efficacité de collision (défini en 1.4.3, chapitre 2). D'où :

$$\left(\frac{\partial Qr}{\partial t}\right)_{accr} = \rho_a Qr Qc \frac{\frac{\pi}{4}(D_{pr})^2 (V(D_{pr}) - V(D_{mc})) \gamma_c^2(D_{pr}, D_{mc}) E(D_{pr}, D_{mc})}{m_r(D_{pr})} \quad (A3)$$

$$\left(\frac{\partial Qr}{\partial t}\right)_{accr} = ACCREQRW = -\left(\frac{\partial Qc}{\partial t}\right)_{accr} \text{ en kg/(kg}_{air} \cdot s)$$

Cette équation est la même que celle utilisée précédemment avec la distribution lognormale, seul les calculs de la masse prédominante et de la vitesse de la masse prédominante de la pluie sont différents, car ils font appel à la distribution gamma généralisée.



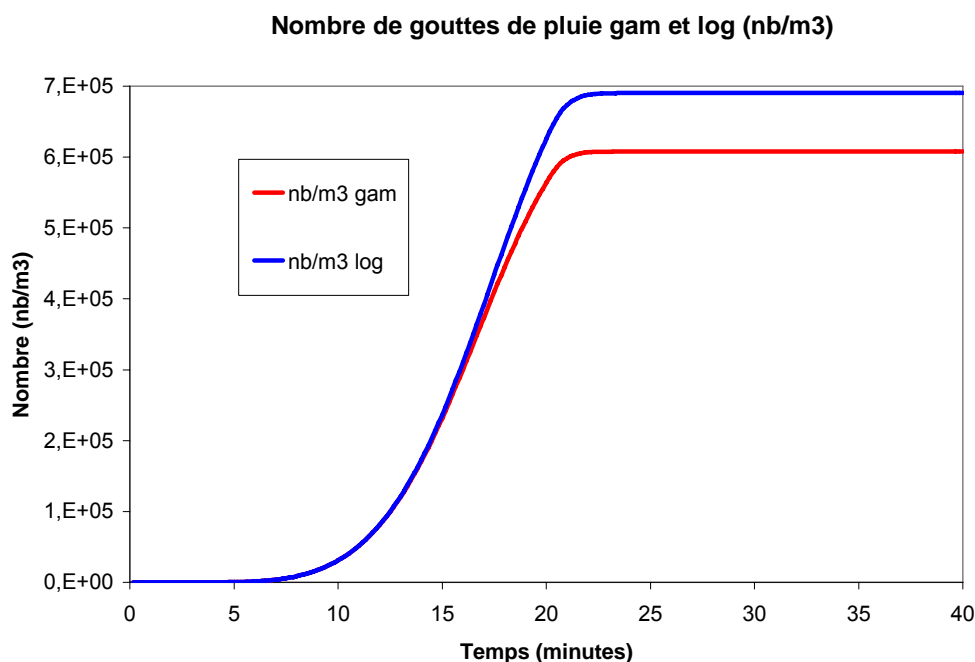
**Figure 83 : Evolution du contenu en eau de pluie par autoconversion et accrétion gamma et log-normale.**

On observe sur la figure (83) ci dessus (simulation où seule l’autoconversion et l’accrétion sont activées) que l’évolution du contenu en eau de pluie est légèrement supérieure avec la paramétrisation gamma qu’avec la paramétrisation lognormale. En effet, pour des gouttes de pluie de petites tailles (inférieures à 400 microns), la paramétrisation de la vitesse de chute utilisée avec la distribution gamma donne une vitesse supérieure à celle utilisée avec la distribution log-normale. Il en résulte une accrétion accrue des gouttelettes sur les gouttes d’eau et donc un rapport de mélange en eau de pluie légèrement supérieur à celui obtenu avec la distribution log-normale.

L’accrétion n’a pas d’impact direct sur l’évolution du nombre de gouttes de pluie mais elle en a un sur l’évolution du nombre de gouttelettes nuageuses. Ce dernier évolue proportionnellement au contenu en eau nuageuse.

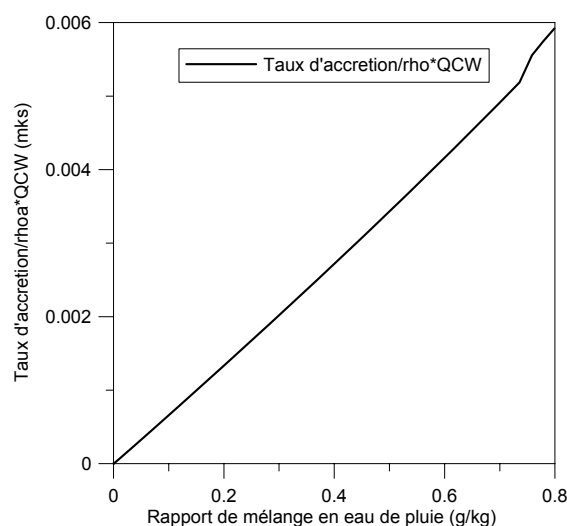
$$-\left(\frac{\partial N_c}{\partial t}\right)_{accr} = N_c \frac{ACCREQRW}{Q_c} = ACCRENCW \quad (A4)$$

L’évolution légèrement différente du nombre de gouttelettes de pluie avec les deux types de distributions implique à son tour une incidence sur le nombre de gouttes de pluie par le biais de l’autoconversion. En effet la vitesse de chute supérieure avec la distribution gamma augmente l’accrétion des gouttelettes sur les gouttes, ce qui fait diminuer plus vite le nombre de gouttelettes qu’avec la simulation lognormale, il en résulte une autoconversion plus faible, et donc un nombre de gouttes inférieur pour la simulation gamma, figure (84) ci dessous.



**Figure 84 : Evolution de la concentration en nombre des gouttes de pluie pour les distributions gamma et lognormale avec l'autoconversion et l'accrétion**

La figure (85) ci-dessous présente l'évolution du taux d'accrétion en fonction du rapport de mélange en eau de pluie, ce qui permet de comparer le taux M2C2 à ceux de la littérature. Ce graphique est en accord avec les courbes obtenues par Berry et Reinhardt, (1973) sachant que le nombre de gouttes est de l'ordre de quelques centaines par litre lors de notre simulation.



**Figure 85 : taux d'accrétion divisé par le contenu en eau nuageuse en fonction du rapport de mélange en eau de pluie avec la distribution gamma.**

## Autocollection

L'autocollection est le mécanisme qui permet aux gouttes de pluie de grossir par collection des gouttes de pluie entre elles. Ce mécanisme n'a donc qu'un effet sur le nombre de gouttes de pluie et aucun sur le contenu en eau de pluie.

Nous utilisons la même paramétrisation que celle utilisée précédemment dans M2C2, selon Berry et Reinhardt (1973) :

$$\left(\frac{\partial Nr}{\partial t}\right)_{autocol} = -\rho_a QrNr B_{autocol}(D_{pr}, D_{mr})$$

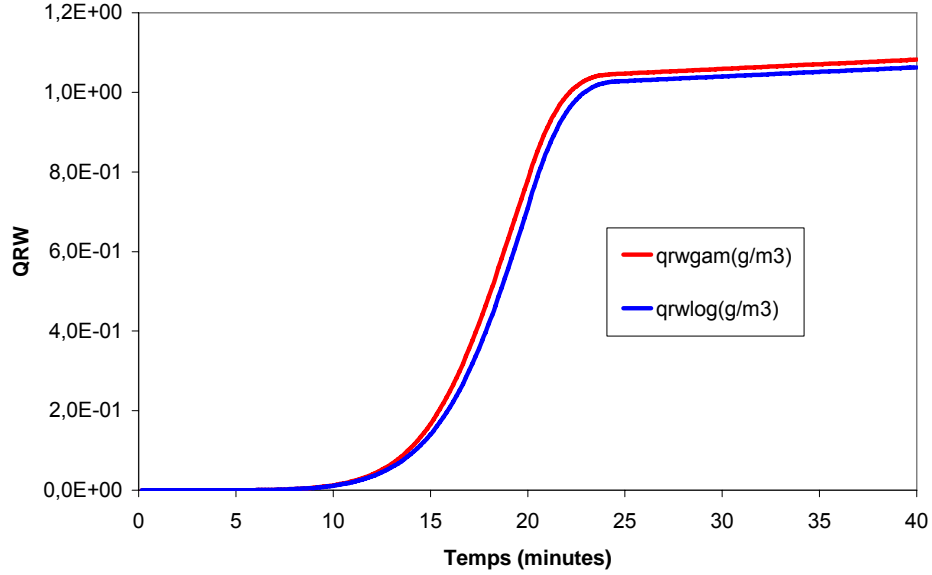
Avec

$$B_{autocol}(D_{pr}, D_{mr}) = \frac{K(D_{pr}, D_{mr})}{m_r(D_{pr}) + m_r(D_{mr})} = \frac{\frac{\pi}{4}(D_{pr})^2 (V_r(D_{pr}) - V_r(D_{mr})) \gamma^2(D_{pr}, D_{mr}) E(D_{pr}, D_{mr})}{m_r(D_{pr}) + m_r(D_{mr})}$$

$$\left(\frac{\partial Nr}{\partial t}\right)_{autocol} = -\rho_a QrNr \frac{\frac{\pi}{4}(D_{pr})^2 (V_r(D_{pr}) - V_r(D_{mr})) \gamma^2(D_{pr}, D_{mr}) E(D_{pr}, D_{mr})}{m_r(D_{pr}) + m_r(D_{mr})} \quad (A5)$$

$$\left(\frac{\partial Nr}{\partial t}\right)_{autocol} = -AUTOLNRW \text{ en nombre}_{pluie}/(m^3.s)$$

**QRW (g/m3) gam et log (autoconversion, accretion, autocollection)**



**Figure 86 : contenu en eau de pluie par autoconversion, accrétion et autocollection (distributions gamma et log-normale).**

On observe, sur la figure (86) ci-dessus, que l'impact de l'utilisation d'une distribution gamma généralisée sur le contenu en eau de pluie par autoconversion, accrétion et autocollection est très modéré, à peine visible sur notre simulation.

## Evaporation et condensation

Le taux d'évaporation/condensation de l'eau de pluie est fondé sur la formulation théorique de Pruppacher et Klett (1997) intégré sur la distribution dimensionnelle gamma généralisée des gouttes de pluie. Les effets de la ventilation, de la variation de pression, et de la température sont pris en compte (cf. 1.3.4.1., chapitre 2), d'où :

$$\left(\frac{\partial Qr}{\partial t}\right)_{evap/cond} = \frac{2\pi(S_l - 1)}{A\rho_a} Nr \left[ \overline{f_{r0}} M_r(1) + \overline{f_{r1}} \left(\frac{\rho_a}{\eta}\right)^{\frac{1}{2}} Scv^{\frac{1}{3}} \left( c_r \left(\frac{\rho_a}{\rho_0}\right)^{0.4} \right)^{\frac{1}{2}} M_r \left(\frac{3+d_r}{2}\right) \right] \quad (A6)$$

$$\left(\frac{\partial Q_r}{\partial t}\right)_{\text{evap / cond}} = CONDQRW = -\left(\frac{\partial Q_v}{\partial t}\right)_{\text{evap / cond}}$$

En cas d'évaporation, il faut prendre en compte également la perte d'un certain nombre de gouttes de pluie, en effet, les gouttes de pluie les plus petites vont disparaître à chaque pas de temps durant le processus d'évaporation, pour cela il faut définir un diamètre critique  $D_{crit}$  au dessous duquel les gouttes s'évaporent totalement durant un pas de temps  $dt$  :

La variation de diamètre par évaporation est donnée par :

$$\frac{dD}{dt} = \frac{4S}{A\rho_w D} \quad \text{Où } S \text{ est la sursaturation}$$

On définit le diamètre critique  $D_{crit}$  tel que :

$$\int_0^{D_{crit}} D_r dD_r = \int_t^{t+dt} \frac{4}{A\rho_w} (1 - S_l) dt$$

Or

$$\int_0^{D_{crit}} D_r dD_r = \left[ \frac{D_r^2}{2} \right]_0^{D_{crit}} = \frac{D_{crit}^2}{2}$$

$$\int_t^{t+dt} \frac{4}{A\rho_w} (1 - S_l) dt = \frac{4}{A\rho_w} (1 - S_l) [t]_t^{t+dt} = \frac{4}{A\rho_w} (1 - S_l) \Delta t$$

D'où :

$$D_{crit_r} = \sqrt{\frac{8(1 - S_l)}{A\rho_w} \Delta t} \quad (A7)$$

Le diamètre  $D_{crit}$  correspond au diamètre en dessous duquel les gouttes de pluie vont s'évaporer totalement en un pas de temps, ce sont donc les gouttes qui vont disparaître. Le nombre de gouttes qui s'évaporent durant un pas de temps s'écrit :

$$N_{ev} = \int_0^{D_{crit}} Nr w G(D_r) dD_r = EVANRW \quad (A8)$$

Nous intégrons cette équation non résoluble de manière analytique en utilisant une méthode numérique (la méthode des trapèzes).

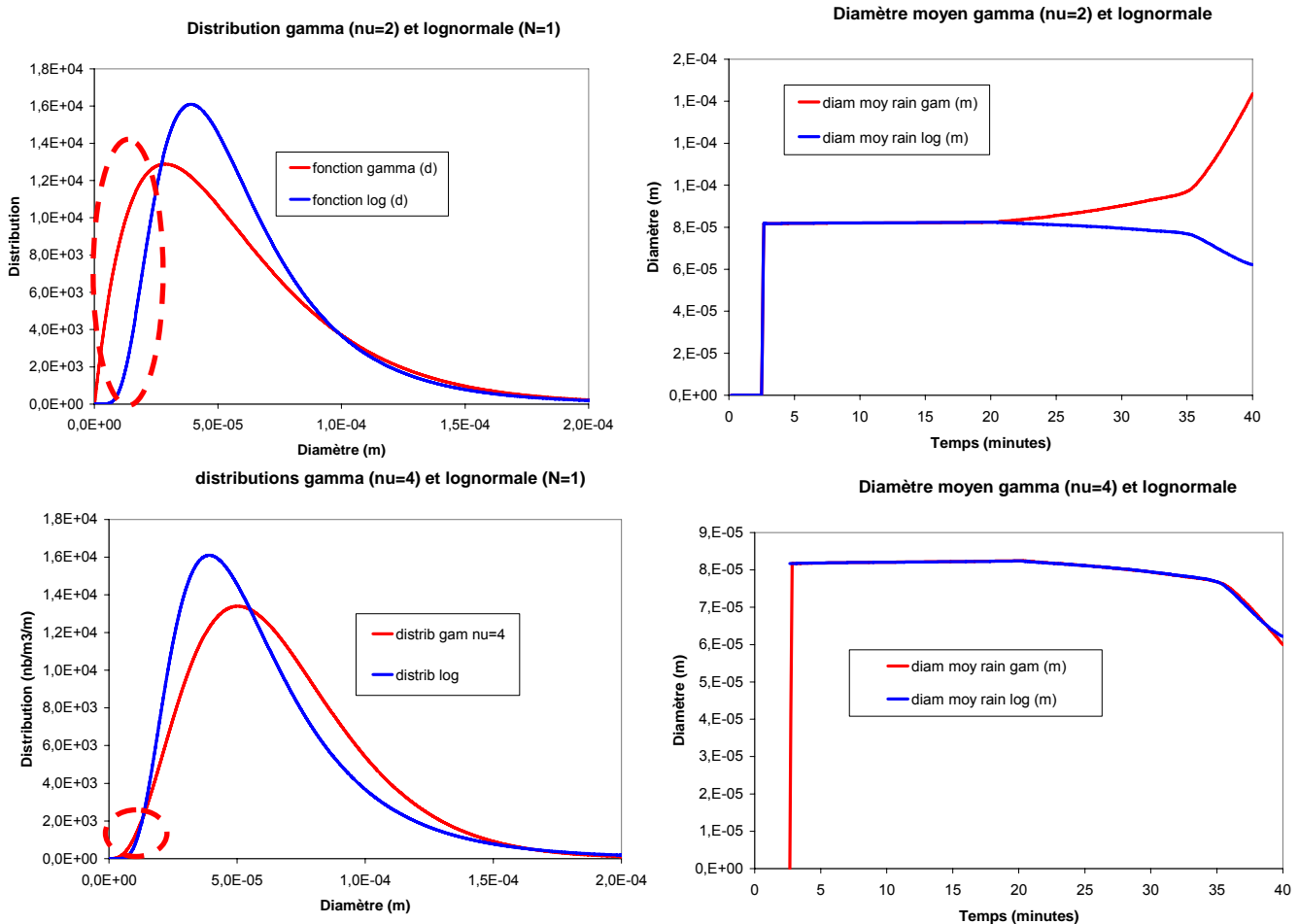
$$EVANRW = -\left(\frac{\partial Nr}{\partial t}\right)_{\text{evap}}$$

## Tests de sensibilité

Nous avons effectué des tests de sensibilité du paramètre de forme de la distribution gamma 'v' sur l'évaporation en nombre en nous intéressant à l'évolution du diamètre des gouttes de pluie durant l'évaporation.

En effet, en prenant  $v=2$  et en simulant un nuage orographique nous nous sommes focalisés sur l'évolution du diamètre des gouttes de pluie durant la phase d'évaporation. Pour effectuer nos tests nous n'avons activé que l'autoconversion et l'évaporation/condensation afin de visualiser l'impact de l'évaporation et de la condensation sur la taille des gouttes, sachant que l'autoconversion, seul mécanisme de production des gouttes, est identique quel que soit la distribution choisie pour les gouttes de pluie. Durant cette simulation,  $D_{crit}$  varie de 0 à 18 microns, les gouttes s'évaporant étant inférieures à  $D_{crit}$ . Or pour les diamètres compris entre zéro et 20 microns (figure (87)), la distribution du nombre de goutte de pluie est très différente entre la distribution lognormale et la gamma avec  $v=2$ , et le nombre de très petites gouttes est beaucoup

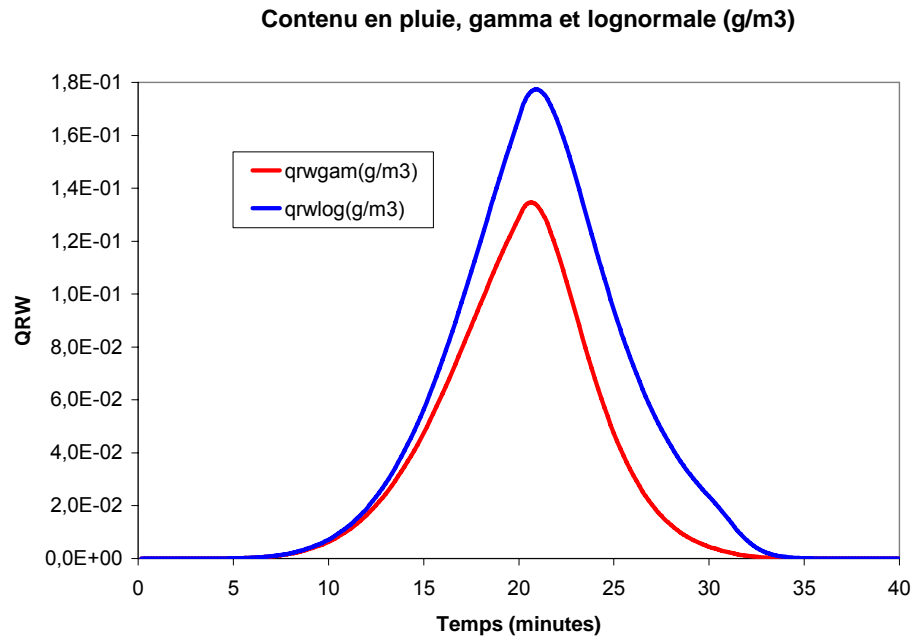
plus important avec la distribution gamma que lognormale (figure (87) en haut à gauche). Si on élimine les gouttes dont le diamètre varie de zéro à  $D_{crit}$  avec la distribution gamma telle que  $v=2$  on en élimine donc un très grand nombre, ce qui aboutit à faire augmenter la taille et la masse des gouttes qui restent (figure (87) en haut à droite). Or c'est un non sens physique. Il a donc été nécessaire de modifier le paramètre de forme de la distribution ( $v$ ) pour trouver une diminution du diamètre moyen des gouttes de pluie lors de l'évaporation. Nous avons choisi  $v=4$  afin d'obtenir une évolution du diamètre la plus proche possible de celle obtenue avec la distribution lognormale comme le montrent les deux graphiques du bas de la figure (87).



**Figure 87 Effet du paramètre de forme  $v$  sur la taille des gouttes de pluie avec autoconversion et l'évaporation**

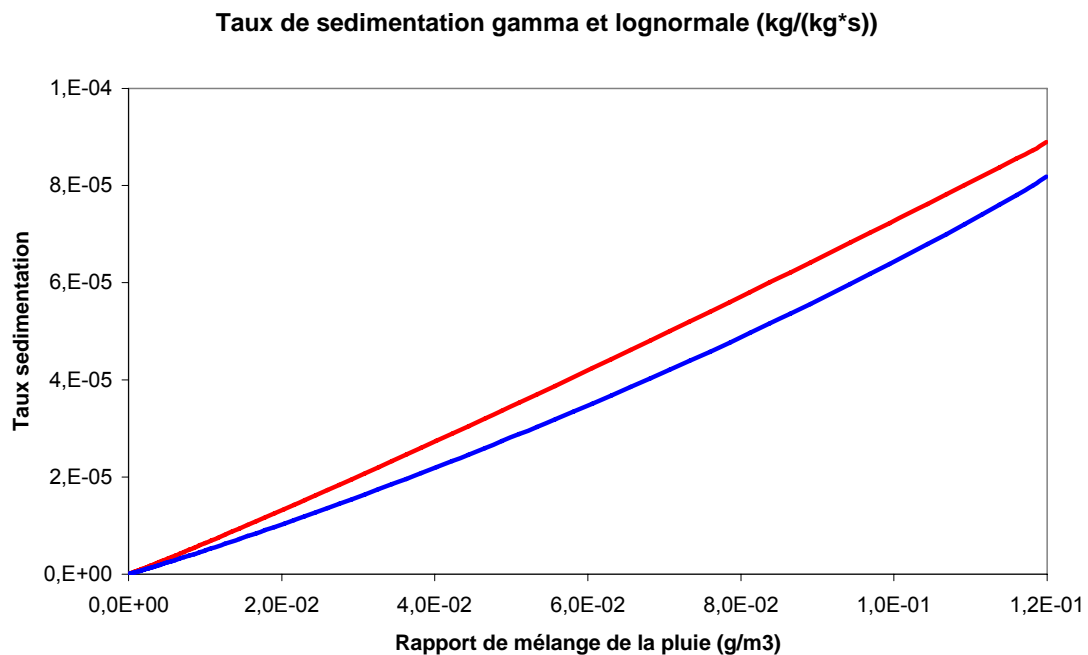
L'utilisation d'une distribution gamma à la place d'une lognormale pour les gouttes de pluie permet de retrouver des résultats très proches de ceux obtenus jusqu'ici avec la version lognormale de M2C2. Seule l'évaporation en nombre a nécessité un ajustement du paramètre de forme de la distribution gamma ( $v$ ) pour éviter l'évaporation d'un trop grand nombre de gouttes, et un accroissement en taille des gouttes restantes injustifiable du point de vue physique. L'utilisation de  $v=4$  permet de retrouver une évolution du diamètre par évaporation très proche de celui obtenu précédemment avec la distribution lognormale, on observe d'ailleurs sur la figure (87) que la distribution gamma avec  $v=4$  est beaucoup plus semblable à la lognormale que celle avec  $v=2$ , avec un asymptote horizontale.

La figure (88) ci dessous présente l'évolution du rapport de mélange de l'eau de pluie avec tous les mécanismes microphysiques. On observe que la vitesse de chute supérieure utilisée avec la distribution gamma tend à faire diminuer plus rapidement le rapport de mélange en eau de pluie.



**Figure 88 : évolution du rapport de mélange avec tous les mécanismes activés, gamma et lognormale.**

La figure (89) ci-dessous présente le taux de sédimentation en fonction du rapport de mélange en eau de pluie. On observe que le taux de sédimentation gamma est légèrement supérieur à celui obtenu avec la distribution lognormale, en accord avec la paramétrisation de la vitesse de chute pour les diamètres inférieurs à 400 microns. Ce taux est également en accord avec celui obtenu par Berry et Reinhardt (1973), sachant que durant notre simulation le nombre maximum de gouttes était de l'ordre de quelques centaines par litre.



**Figure 89 : Taux de sédimentation comparé entre gamma et lognormale.**



## **Annexe 2 : Liste des symboles.**

A : Coefficient de la congélation hétérogène selon Bigg, 1953.	K
$a_j$ : constante de la relation masse diamètre de l'hydrométéore $J m_j(D)=aD^b$	$kg.m^3$
B : Coefficient de la congélation hétérogène selon Bigg	$m^{-3}s^{-1}$
$b_j$ : constante de la relation masse diamètre de l'hydrométéore $J m_j(D)=aD^b$	sans dimension
$c_x$ : coefficient vitesse diamètre tel que $V_x=c_x D^{dx}$	$m^{1-bx}s^{-1}$
$C_x$ : capacitance de l'hydrométéore x	F
Cpw : capacité calorifique de l'eau	J/(K.kg)
$D_0$ : Diamètre médian	m
$D_{modex}$ : diamètre modal de l'hydrométéore x	m
$D_n$ : diamètre caractéristique de la distribution gamma généralisée	m
$D_{moyx}$ : diamètre moyen de l'hydrométéore x	m
$D_{mx}$ : diamètre de la masse moyenne de l'hydrométéore x	m
$D_{px}$ : diamètre de la masse prédominante de l'hydrométéore x	m
$d_x$ : Coefficient vitesse diamètre tel que $V_x=c_x D^{dx}$	sans dimension
$E_{coal}$ : efficacité de coalescence	Sans dimension
$E_{coll}$ : efficacité de collision	Sans dimension
$E_{ic}$ : efficacité de collection= $E_{coll}*E_{coal}$	Sans dimension
$e_p$ : Pression partielle de vapeur saturante au dessus de la phase p	Pa
$\overline{f_j}$ : Facteur de ventilation tel que $\overline{f_j} = \overline{f_{0j}} + \overline{f_{1j}}\chi + \overline{f_{2j}}\chi^2$	Sans dimension
$\overline{f_{0j}}$ : Premier facteur de ventilation	Sans dimension
$\overline{f_{1j}}$ : Deuxième facteur de ventilation	Sans dimension
$\overline{f_{2j}}$ : Troisième facteur de ventilation	Sans dimension
G(D) : distribution gamma généralisée	Sans dimension
$K_a$ : Conductivité thermique de l'air	J/(msK)
$K(D_x, D_y)$ : noyau de collection de entre l'hydrométéore x et y	
$L_p$ : Chaleur latente d'évaporation au dessus de la phase p	J/kg
M(P) : moment d'ordre P	
$m_x$ (barre): masse moyenne de l'hydrométéore x	kg
$m_x(D)$ : masse de l'hydrométéore x en fonction du diamètre	kg
$m_{px}$ : masse prédominante de l'hydrométéore x	kg
$N_x$ : concentration en nombre de l'hydrométéore x	$nb/m^3$
$Q_x$ : rapport de mélange de l'hydrométéore x	g/kg
Rc : Coefficient de rétention	sans dimension
Re : Nombre d Reynolds de l'hydrométéore dans l'air	sans dimension
Rv : Constante massique de la vapeur d'eau	J/(kg.K)
Scv : nombre de Schmidt de la vapeur d'eau	sans dimension
Si : sursaturation au dessus de la glace (%)	sans dimension
$V_{mx}$ : Vitesse moyenne de chute en masse de l'hydrométéore x	$m.s^{-1}$
$V_{nx}$ : Vitesse de chute moyenne en nombre de l'hydrométéore x	$m.s^{-1}$
$V_x(D)$ : Vitesse de l'hydrométéore x en fonction du diamètre de l'hydrométéore	x $m.s^{-1}$
XMG0 : Masse minimale d'un flocon de neige roulée	kg
XMI0 : Masse minimale d'un cristal de glace primaire	kg
XMS0 : Masse minimale d'un flocon de neige	kg
$\alpha$ : Deuxième paramètre de forme de la distribution gamma	sans dimension
$\beta$ : Coefficient de cocondensation	sans dimension

## Annexes

$v$ : Premier paramètre de forme de la distribution gamma	sans dimension
$\rho_0$ : Densité moyenne de l'air au niveau de la mer	$\text{kg/m}^3$
$\rho$ : Densité de l'air à l'altitude considérée	$\text{kg/m}^3$
$\Gamma(x)$ : Fonction gamma	sans dimension
$\sigma$ : Ecart type	sans dimension
$\eta$ : Viscosité dynamique de l'air	$\text{Pa.s}$
$\chi$ : facteur de diffusivité de la vapeur d'eau dans l'air	$\text{m}^2.\text{s}^{-1}$

### **Annexe 3 : Récapitulatif des taux microphysiques dans M2C2.**

Sens microphysique	Équivalence dans Reisner et al. (1998)	M2C2	Sous-programmes M2C2
Autonconversion : eau nuageuse → pluie Source pluie / puits eau nuageuse		AUTOCQRW	AUTOCONV
Autonconversion de l'eau nuageuse → pluie Source pluie		AUTOCNRW	
Autonconversion et autocollection de l'eau nuageuse : Puits en eau nuageuse		AUTOCNCW	
Accretion : eau nuageuse (pluie) → pluie Source pluie / puits eau nuageuse		ACCREQRW	ACCRETION
Accretion : eau nuageuse (pluie) → (pluie) Puits eau nuageuse		ACCRENCW	
Autocollection de la pluie Puits pluie		AUTOLNRW	AUTOCOLL
Evaporation/condensation : pluie → vap d'eau Source vap d'eau / puits pluie ou l'inverse		CONDQRW	FORMCLOUD
Evaporation/condensation : qcw → vap d'eau Source vap d'eau / puits eu nuageuse ou l'inverse		CONQCW	
Nucléation des gouttelettes nuageuses Source eau nuageuse / puit vapeur d'eau		QCWNUC	
Condensation de la vap d'eau en gouttelettes Source en gouttelettes		XNUCNCW	
Evaporation de la pluie Puits pluie		EVANRW	MICRODRIVE
Evaporation de l'eau nuageuse Puits eau nuageuse		EVANCW	
Nucléation hétérogène glace Source glace / puits vapeur d'eau	Pidsn	XNUCQI	FORMICE
Nucléation hétérogène glace Source glace	$Pidsn * (\rho_a / X_{M10})$	XNUCNI	
Congélation hétérogène des gouttelettes d'eau Source glace / puits eau nuageuse	Pifzc	FREZQI	FREEZE
Congélation hétérogène Source glace / puits eau nuageuse		FREZNI	
Congélation hétérogène de la pluie Source neige roulée / puits pluie	Pgfzr	FREZQR	FREEZRIN
Congélation hétérogène de la pluie Source neige roulée / puits pluie	Ngfzr	FREZNR	
Collection de la glace sur la pluie donne de la neige roulée Source neige roulée / puits glace		COLLQIRG*(1-D1)	COLLIRG
Collection de la glace sur la pluie donne de la neige Source neige / puits glace		COLLQIRG*D1	

Collection de la glace sur la pluie donne de la neige roulée Puits glace		COLLNIRG	
Collection de la pluie sur la glace donne de la neige Source neige / puits pluie	Piacr	COLLQRIG*D1	
Collection de la pluie sur la glace donne de la neige roulée Source neige roulée / puits pluie	Piacr	COLLQRIG*(1-D1)	
Collection de la pluie sur la glace donne de la neige roulée Source neige roulée / puits pluie		COLLNRIG*(1-D1)	
Collection de la pluie sur la glace donne de la neige Source neige / puits pluie		COLLNRIG*D1	
Collection pluie (neige) → (neige, neige roulée) Puits pluie	Psacr	COLLQRS	COLLRS
Neige (pluie) → neige roulée Source neige roulée / puits neige	Pg.racs	COLLQSRG	
Pluie (neige) → neige roulée Source neige roulée / puits pluie	Pg.sacr	COLLQRSG	
Pluie (neige) → neige Source neige / puits pluie	Ps.sacr	COLLQRSS	
Neige pluie → neige roulée Source neige roulée / puits pluie et neige	Ng.sacr	COLLNSRG	
Pluie neige → neige Puits pluie		COLLNRSS	
Glace (neige) → neige Source neige / puits glace	Psaci	COLLQIS	COLLIS
Glace (neige) → neige Puits glace		COLLNIS	
Neige neige → neige Puits neige		AUTONSNOW	AUTOCOLLS
Eau nuageuse (neige) → (neige, neige roulée) Puits eau nuageuse	Psacw	COLLQCS	COLLCS (DEPVSNOW)
Eau nuageuse (neige) → (neige, neige roulée) Puits eau nuageuse		COLLNCS	
Neige (eau nuageuse) → neige roulée Source neige roulée / puits neige		COLNSAMBG	
(Eau nuageuse, neige) → neige roulée Source neige roulée	Pg.sacw	COLQCSG	
(Eau nuageuse, neige) → neige Source neige	Ps.sacw	COLQCSS	
Eau nuageuse (neige roulée) → neige roulée Source neige roulée / puits eau nuageuse	Pgacw	COLQCG	COLLCG
Eau nuageuse (neige roulée) → neige roulée Puits eau nuageuse		COLNCG	
Pluie (neige roulée) → neige roulée Source neige roulée / puits pluie		COLLQRG	COLLRG

Pluie (neige roulée) → neige roulée Puits pluie		COLLNRG	
Vapeur d'eau (glace) → glace Source glace / puits vapeur d'eau	Pidep	DEPVQI	DEPVICE
Vapeur d'eau (neige) → neige Source neige / puits vapeur d'eau	Psdep	DEPQSNOW	DEPVSNOW
Neige → vapeur d'eau Puits neige		EVANSNOW	
Vapeur d'eau (neige roulée) → neige roulée Source neige roulée / puits vapeur d'eau	Pgdep	DEPQGRAUP	DEPVGRAUP
Neige roulée → vapeur d'eau Puits neige roulée		EVANGRAUP	
Eau nuageuse (glace) → glace Source glace / puits eau nuageuse	Pi.iacw	RIMQI	RIMICE
Eau nuageuse (glace) → neige roulée Source neige roulée / puits eau nuageuse	Pg.iacw	RIMQG	
Glace (eau nuageuse) → neige roulée Source neige roulée / puits glace	Picng	RIMQIG	
Eau nuageuse (glace) → (glace, neige roulée) Puits eau nuageuse		RIMNC	
Glace, (eau nuageuse) → neige roulée Source neige roulée / puits glace	Nicng	RIMNIG	
Glace → neige Source neige / puits glace	Picns	FORMQS	FORMSNOW
(Glace) → neige Source neige		FORMNS	
Autoconversion glace → (neige) Autocollection glace → glace Puits glace		FORMNICE	
Fonte de la neige → pluie Source pluie / puits neige	Psmilt	XMELTQS	MELTSNOW
Fonte de la neige → pluie Source pluie / puits neige		XMELTNS	
Fonte de la neige roulée → pluie Source pluie / puits neige roulée	Pgmilt	XMELTQG	MELTGRAUP
Fonte de la neige roulée → pluie Source pluie / puits neige roulée		XMELTNG	
Collection neige roulée par la pluie → pluie Source pluie / puits neige roulée		XMELTRG	MELTRCGRAUP
Collection Neige roulée par les gouttelettes → pluie Source pluie / puits neige roulée		XMELTCG	
Neige roulée → pluie Source pluie / puits neige roulée		XMELTNCRG	
Eau nuageuse sur neige → glace nuageuse Source glace nuageuse / puits neige	Pispl	XICEMQS	ICEMULT
Eau nuageuse sur neige roulée → glace nuageuse Source glace nuageuse / puits neige roulée		XICEMQG	
Eau nuageuse sur neige et neige roulée → glace		XICEMN	

## Annexes

Source glace nuageuse			
Pluie précipite Puits pluie		SEDQRW	SEDIMENTAT ION
Pluie précipite Puits pluie		SEDNRW	
Neige précipite Puits neige		SEDQS	
Neige précipite Puits neige		SEDNS	
Neige roulée précipite Puits neige roulée		SEDQG	
Neige roulée précipite Puits neige roulée		SEDNG	

## Bibliographie

- Abdul-Razzak, H., and S. J. Ghan, 2000: A parametrization of aerosol activation, II. Multiple aerosol types. *J. Geophys. Res.*, **105**, 6837-6844.
- Abdul-Razzak, H., S. J. Ghan and C. Rivera-Carpio, 1998: A parametrization of aerosol activation, I. Single aerosol type. *J. Geophys. Res.*, **103**, 6123-6132.
- Ackerman, T.P., K.-N. Liou, F.P.J. Valero, and L. Pfister, 1988: Heating Rates in Tropical Anvils. *J. Atmos. Sci.*, **45**, 1606 – 1628
- Ackerman, TP, 1988: Cirrus microphysics and infrared radiative transfer: a case study. *Annalen der Meteorologie, Offenbach a/M.*, n.s., 1(25), 133-134.
- Alheit, R.R., A. I. Flossmann, and H. R. Pruppacher, 1990: A theoretical study of the wet removal of atmospheric pollutants, IV: The uptake and redistribution of aerosol particles through nucleation and impaction scavenging by growing cloud drops and ice particles. *J. Atmos. Sci.*, **47**, 870–887
- Andreae, M.O., and P.J. Crutzen, 1997: Atmospheric aerosols: biogeochemical sources and role in the atmospheric chemistry, *Science*, **276**, 1052-1058
- Atkinson, R., D.L. Baulch, R.A. Cox, J.N. Crowley, R.F. Hampson, R.G. Hynes, M.E. Jenkin, M.J. Rossi, and J. Troe., 2004: Evaluated kinetic and photochemical data for atmospheric chemistry: Volume I – gas phase reactions of Ox, HOx, Nox and SOx species, *Atmos. Chem. Phys.*, **4**, 1461–1738.
- Atkinson, R., D.L. Baulch, R.A. Cox, J.N. Crowley, R.F. Hampson, R.G. Hynes, M.E. Jenkin, M.J. Rossi, and J. Troe, 2006: Evaluated kinetic and photochemical data for atmospheric chemistry: Volume II - gas phase reactions of organic species, *Atmos. Chem. Phys.*, **6**, 3625-4055.
- Audiffren, N., M. Renard, E. Buisson and N. Chaumerliac, 1998 : Deviations from the Henry's law equilibrium during cloud events : a numerical approach of the mass transfer between phases and specific numerical effects, *Atmos. Res.*, **49**, 139-161
- Audiffren, N., S. Cautenet, and N. Chaumerliac, 1999 : A modelling study of the influence of ice scavenging on the chemical composition of liquid-phase precipitations of cumulonimbus cloud, *Journal of applied meteorology*, vol **38**, 1148-1160
- Barth, M.C., A. L. Stuart and W.C. Skamarock, 2001: Numerical simulation of the July 10, 1996, Stratospheric-Tropospheric Experiment: Radiation, Aerosols and Ozone (STERAO)-Deep Convection experiment storm: Redistribution of soluble tracers. *J. Geophys. Res.*, **106**, 12381-12400
- Barth, M. C., S. Sillman, R. Hudman, M. Z. Jacobson, C.-H. Kim, A. Monod, and J. Liang, 2003: Summary of the cloud chemistry modeling intercomparison: Photochemical box model simulation, *J. Geophys. Res.*, 108(D7), 4214, doi:10.1029/2002JD002673.
- Beard, K. V. and H. R. Pruppacher, 1971: A wind tunnel investigation of the rate of evaporation of small water droplets falling at terminal velocity in air. *J. Atmos. Sci.*, **28**, 1455-1464
- Bergeron, T., 1935: On the physics of cloud and precipitation. *Proc. 5th Assembly U.G.G.I. Lisbon*, **2**, 156.
- Berry, E. X. and R. L. Reinhardt, 1973 : Modelling of condensation and collection within clouds. D.R.I. *Phys. Sci. Pub.*, N° 16, University of Nevada.
- Berry, E. X. and R. L. Reinhardt, 1974a : An analysis of cloud drops growth by collection: Part I. Double distributions, *J. Atmos. Sci.*, **31**, 1814-1824.
- Berry, E. X. and R. L. Reinhardt, 1974b : An analysis of cloud drops growth by collection: Part II. Single initial distributions, *J. Atmos. Sci.*, **31**, 1825-1831.
- Berry, E. X. and R. L. Reinhardt, 1974c : An analysis of cloud drops growth by collection: Part III. Accretion and self collection, *J. Atmos. Sci.*, **31**, 2118-2126.
- Berry, E. X. and R. L. Reinhardt, 1974d : An analysis of cloud drops growth by collection: Part IV. A new parametrization, *J. Atmos. Sci.*, **31**, 2127-2135.

- Berry, E. X. and M.P Pranger, 1974: Equations for calculating the terminal velocities of water drops, *J. Appl. Meteor.*, **13**, 108-113.
- Bigg, E. K., 1953: The supercooling of water *.Proc.Phys.Soc.London.*,**B66**, 688-694.
- Borys, R.D., E.E. Hindman, and P.J. Demott, 1988: The chemical fractionation of atmospheric aerosol as a result of snow crystal formation and growth, *J. Atmos. Chem.*, **7**, 213-239.
- Buisson, E. 1999: Modélisation de la redistribution des polluants en présence de nuages : Application dans le cadre de la campagne de mesures N.A.R.E 1993 (North Atlantic Regional Experiment), thèse, Université Blaise Pascal, UFR de recherche scientifique et technique.
- Calvert, J.G., A. Lazrus, G.L. Kok, B.G. Heikes, J.G Walega, J. Lin and C.A. Cantrell, 1985: Chemical mechanisms of acid generation in the troposphere, review article, *Nature*, **317**, 27-35.
- Chaumerliac, N. E. Richard, J-P. Pinty and E.C Nickerson, 1987: Sulfur scavenging in a mesoscale model with quasi-spectral microphysics: Two dimensional results for continental and maritime clouds, *J. Geophys. Res.*, **92**, 3114-3126.
- Chaumerliac, N. M. Leriche, and N. Audiffren. 2000: Modeling of scavenging processes in clouds: some remaining questions about the partitioning of gases among gas and liquid phases *Atmos. Res.* Vol. **53** , No. 1-3 , p. 29-43
- Chen, J.-P. and D. Lamb, 1990: The role of precipitation microphysics in the selective filtration of air entering the upper troposphere, 1990 Conference on Cloud Physics, pp. 479-484.
- Cho, H.R. M. Niewiadomski, and J. Iribarne, 1989: A model of the effect of cumulus clouds on the redistribution and transformation of pollutants. *Journal of Geophysical Research*, **94**(D10): 12895-12910.
- Clapsaddle, C. and D. Lamb, 1989: Sorption behaviour of the SO<sub>2</sub> on ice at temperature between -30°C and -5°C, *Geophys. Res. Lett.*, **16**, 1173-1176.
- Cohard, J.-M. and J.-P. Pinty, 2000: A comprehensive two-moment warm microphysical bulk scheme. I: Description and tests. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, **126**, 1815-1842.
- Cooper, W. A., 1986: Ice initiation in natural clouds. *Precipitation Enhancement-A Scientific Challenge, Meteor. Monogr.*, No.43, Amer. Meteor. Soc., 29-32
- Cotton, W. R., M. A. Stephens, T. Nehr Korn, and G. J. Tripoli, 1982: The Colorado State University three-dimensional cloud model—1982. Part II: An ice phase parameterization. *J. Rech. Atmos.*, **16**, 295–320.
- Cotton, W.R., G.J. Tripoli, R.M. Rauber and E.A. Mulvihill, 1986: Numerical simulation of the effects of varying ice crystal nucleation rates and aggregation processes on orographic snowfall. *J. Clim. Appl. Meteor.*, **25**, 1658-1680.
- Cotton, W.R., R.A. Pielke Sr., R.L. Walko, G.E. Liston, C.J. Tremback, H. Jiang, R.L. McAnelly, J.Y. Harrington, M.E. Nicholls, G.G. Carrio, and J.P. McFadden, 2003: RAMS 2001: Current status and future directions. *Meteor. Atmos. Phys.*, **82**, 5-29
- Crutzen, P.J, M.G Lawrence, U. Pöschl, 1999: On the background photochemistry of tropospheric ozone. *Tellus. A* **51**, 123-146.
- Crutzen, P. J. and M. G. Lawrence, 2000 : The impact of precipitation scavenging on the transport of trace gases: A 3-dimensional model sensitivity study, *J. atmos. Chem.*, **37**, 81-112,.
- Deguillaume, L., M. Leriche, A. Monod and N.Chaumerliac, 2004 : The role of transition metal ions on HO<sub>x</sub> radicals in clouds: a numerical evaluation of its impact on multiphase chemistry. *Atmos. Chem. Phys.* Vol. **4** , No. 1, 95-110.
- Deguillaume, L., M. Leriche, K. Desboeufs, G. Mailhot, C. Georges, and N. Chaumerliac, 2005a: Transition metals in atmospheric liquid phases: sources, reactivity and sensitive parameters, *Chemical Reviews*, **105**, 3388-3431.
- Deguillaume, L., M. Leriche and N. Chaumerliac, 2005b: Impact of radical versus non-radical pathway in the Fenton chemistry on the iron redox cycle in clouds. *Chemosphere* Vol **60**, Issue 5 , p. 718-724



- DeMicheli S. J. and J.V. Iribarne, 1963: La solubilité des électrolytes dans la glace. *J. Chim. Phys.* 767-774.
- Dickerson R. R., G. J. Huffman, W. T. Luke, L. J. Nunnermacker, K. E. Pickering, A. C. D. Leslie, C. G. Lindsey, W. G. N. Slinn, T. J. Kelly, A. C. Delany, J. P. Greenberg, P. R. Zimmerman, J. F. Boatman, J. D. Ray and D. H. Stedman, 1987: Thunderstorms: An important mechanism in the transport of air pollutants, *Science*, **235**, 460-465.
- Dominé, F., and E. Thibert, 1996: Mechanism of incorporation of trace gases in ice grown from the gas phase. *Geophys. Res. Lett.*, **23**(24), 3627-3630.
- Dowling, D. D. and L. F. Radke, 1990 : A summary of the physical properties of cirrus clouds. *J. of Appl. Met.*, **29** : 970–978.
- Ervens, B., G. Feingold, G. J. Frost and S. M. Kreidenweis, 2004: A modeling study of aqueous production of dicarboxylic acids: 1. Chemical pathways and speciated organic mass production, *J. Geophys. Res.* **109**, D15205, doi:10.1029/2003JD004387, 2004.
- Fernandez, M. A., R. G. Hynes, and R. A. Cox, 2005: Kinetics of ClONO<sub>2</sub> Reactive Uptake on Ice Surfaces at Temperatures of the Upper Troposphere. *J. Phys. Chem. A*, **109**, 9986-9996
- Ferrier, B. S., 1994 : A double-moment multiple-phase four-class bulk ice scheme. Part I: Description. *J.Atmos.Sci.*, **51**, 249-280
- Ferrier, B. S., W.-K. Tao and J. Simpson, 1995: A double-moment multiple phase four-class bulk ice scheme. Part II: simulations of convective storms in different large-scale environments and comparison with other bulk parameterizations. *J. Atmos. Sci.*, **52**, 1001-1033.
- Field, P. R., R. J. Hogan, P. R. A. Brown, A. J. Illingworth, T.W. Choularton, and R. J. Cotton, 2005: Parameterization of ice-particle size distributions for mid-latitude stratiform cloud. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, **131**, 1997-2017.
- Fletcher, N. H. 1962 : *The physics of rain clouds*. Cambridge University Press, UK
- Foote, G.B., and P.S. DuToit, 1969 : Terminal velocity of raindrops aloft. *J. Appl. Meteor.*, **8**, 249-253.
- Fries, E, W. Haunold, W. Jaeschke, I. Hoog, S. K. Mitra, S. Borrmann, 2006: Uptake of gaseous aromatic hydrocarbons by non-growing ice crystals, *Atmospheric Environment* **40**, 5476–5485.
- Furukawa Y., 1982 : Structures and formation mechanisms of snow polycrystals. *J. Meteor. Soc. Japan*, **60**, 535–547.
- Gear, C.W., 1971: Numerical initial value problems in ordinary differential equation, Prentice-Hall, Englewood Cliffs, NJ, pp. 158-166.
- Gelencsér, A. and Z. Varga, 2005: Evaluation of the atmospheric significance of multiphase reactions in atmospheric secondary organic aerosol formation, *Atmos. Chem. Phys.* **5**, 2823-2831.
- Gierens, K, U. Schumann, M. Helten, H., Smit, and A. Marenco, 1999: A distribution law for relative humidity in the upper troposphere and lower stratosphere derived from three years of MOZAIC measurements. *Annales Geophysicae. Atmospheres, Hydrospheres and Space Sciences*, Berlin, Germany. 17, 1218- 1226.
- Gohm, A., 2005: Modeling of Alpine Atmospheric Dynamics II 707.424, VU 2, SS2005Unit 2: The Cloud Microphysics Parameterization 22 March 2005
- Graedel, T.E. and C.J. Weschler, 1981: Chemistry within aqueous atmospheric aerosols and raindrops, *Rev. Geophys. Space Phys.*, **19**-4, 505-539.
- Grant, N.H. and H.E., Alburn, 1965: Fast reactions of ascorbic acid and hydrogen peroxide in ice, a presumptive early environment. *Science*, **150**: 1589-1590.
- Hall, W. D., and H. R. Pruppacher, 1977: The survival of ice particles falling from cirrus clouds in subsaturated air. *J. Atmos. Sci.*, **33**, 1995-2006.
- Hallet, J. and S. C. Mossop, 1974: Production of secondary ice particles during the riming process. *Nature*, **249**, 26-28.
- Hallet, J., 1964: Experimental studies of the crystallization of supercooled water, *J. Atmos. Sci.*, **21**, 671-682.

- Hegg, D. A., 2001: The impact of clouds on aerosols populations. *IGAC activities newsletter* N°23, avril 2001.
- Herrmann, H., B. Ervens, H.-W. Jacobi, R. Wolke, P. Nowacki and R., Zellner, 2000: CAPRAM2.3: A chemical aqueous phase radical mechanism for tropospheric chemistry. *J. Atmos. Chem.* **36**, 231–284.
- Herrmann, H., 2003: Kinetics of aqueous phase relevant for atmospheric chemistry, *Chem. Rev.*, 103, 4691-4716.
- Herrmann, H., A. Tilgner, P. Barzagli, Z. Majdik, S. Gligorovski, L. Poulain and A. Monod, 2005: Towards a more detailed description of tropospheric aqueous phase organic chemistry: CAPRAM 3.0, *Atmos. Environ.*, **39**, 4351-4363.
- Heusel-Waltrop, WA, K. Diehl, S.K. Mitra, H.R. Pruppacher, 2003: A Laboratory and Theoretical Study on the Uptake of SO<sub>2</sub> Gas by Large and Small Water Drops Containing Heavy Metal Ions. *J. Atmos. Chem.*, **44**, 211-223.
- Heymsfield, A. J., 1972: Ice crystals terminal velocities. *J. Atmos. Sci.*, **29**, 1348-1356.
- Heymsfield, A. J, L. M. Miloshevich, C. Twohy, G. Sachse, S. Oltmans, 1998: Upper-tropospheric relative humidity observations and implications for cirrus ice nucleation. *Geophys. Res. Lett.*, **25**, 1343-1346.
- Hoffmann, M.R., 1986: On the kinetics and mechanism of oxidation of aquated sulphur dioxide by ozone, *Atmos. Environ.*, **20**, 1145-1154.
- House, R. A., P. V. Hobbs, P. H Herzegh and D. B. Parsons, 1979: Size distribution of precipitation particles in frontal clouds. *J. Atmos. Sci.*, **36**, 156-162
- Ikawa, K. and K. Saito, 1991: Description of a non hydrostatic model developed at the forecast research department of the MRI. Technical Reports of the Meteorological Research Institute, No. 28
- Iribarne, J. V., L. A. Barrie, and A. Iribarne, 1983: Effect of freezing on sulfur dioxide dissolved in supercooled droplets, *Atmos. Environ.*, **17**(5), 1047–1050.
- Iribarne, J. V., and T. Pyshnov, 1990a: The effect of freezing on the composition of the supercooled droplets, I, Retention of HCl, HNO<sub>3</sub>, NH<sub>3</sub>, and H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, *Atmos. Environ.*, Part A, **24**, 389-398.
- Iribarne, J. V., and T. Pyshnov, 1990b: The effect of freezing on the composition of the supercooled droplets, II, Retention of S(IV), *Atmos. Environ.*, Part A, **24**, 383-387.
- Iribarne, J. V., and L. A. Barrie, 1995: The oxidation of S(IV) during riming by cloud droplets, *J. Atmos. Chem.*, **21**, 97–114.
- Ivanova, D., D. L. Mitchell, W. P. Arnott and M. Poellot, 2001: A GCM parameterization for bimodal size spectra and ice mass removal rates in mid-latitude cirrus clouds. *Atmos. Res.* **59-60**, 89-113.
- Jaccard, D., and L. Levi, 1961: Ségrégation d'impuretés dans la glace. *Z.f.angew.Math.u. Phys (ZAMP)* **12**, 70-76
- Jacob, D. J., 1986 : Chemistry of OH in remote clouds and its role in the production of formic acid and peroxymonosulfate, *J. Geophys. Res.*, **91**, 9807-9826
- Jacob, D. J., 2000 : Heterogeneous chemistry and tropospheric ozone, *Atmos. Environ.*, **34**-12-14, 2131-2159.
- Jaenicke, R., 1988 : Chap 9, In : Aerosols physics and chemistry, Landolt-Börnstein, New Series, Vol. V, Springer, Berlin.
- Jaenicke, R., 1993: Tropospheric aerosols, in: Aerosol-cloud-climate interactions, (Ed) Hobbs, P., Academic Press, San Diego, CA, pp. 1–31.
- Jin, R and L. T. Chu 2006a : Uptake of SO<sub>2</sub> on HOBr-Ice Surfaces, *J. Phys. Chem. A*, **110**, 3647-3654
- Jin, R and L. T. Chu 2006b : Heterogeneous Reactions of SO<sub>2</sub> with HOCl and HOBr on Ice Surfaces, *J. Phys. Chem. A*, **110**, 8719-8728
- Kärcher, B., and M. M. Basko, 2004: Trapping of trace gases in growing ice crystals *Journal of geophysical research*, vol. **109**, D22204, doi:10.1029/2004JD005254
- Keene, W. C., and J. N. Galloway, 1988: The biogeochemical cycling of formic and acetic acids through the troposphere: An overview of current understanding, *Tellus*, Ser. B, **40**, 322–344.

- Keene, W. C., A. A. P. Pszenny, D. J. Jacob, R. A. Duce, J. N. Galloway, J. J. Schultz-Tokos, H. Sievering and J. F Boatman, 1990 : The geochemical cycling of reactive chlorine through the marine troposphere, *Global Geochem. Cycles*, **4**, 407-430.
- Keene, W. C., R. Sander, A. A. P. Pszenny, R. Vogt, P. J Crutzen and J. N. Galloway, 1998: Aerosol pH in the marine boundary layer: a review and model evaluation, *J. Aeros. Sci.*, **29**, 339-356.
- Kessler, E., 1969: On the distribution and continuity of water substance in atmospheric circulation. *Meteor. Monogr.*, **10**, 84 pp.
- Klett, J.D. and M.H. Davis, 1973: Theoretical collision efficiencies of cloud droplets at small Reynolds numbers, *J. Atmos. Sci.*, **30**, 107-117.
- Koenig, L. R. 1971: Numerical modelling of ice deposition. *J.Atmos.Sci.*, **28**, 226-237
- Lamb, D., and R. Blumenstein, 1987: Measurements of the entrainment of sulphur dioxide by rime ice. *Atmos. Environ.*, **21**, 1765-1772.
- Lafore J.P., J. Stein, N. Asencio, P. Bougeault, V. Ducrocq, J. Duron, C. Fischer, P. Hérelil, P. Mascart, V. Masson, J. P. Pinty, J. L. Redelsperger, E. Richard, and J. Vilá-Guerau de Arellano, 1998: The Meso-NH atmospheric simulation system. Part I: adiabatic formulation and control simulations, *Ann. Geophysicae*, **16**, 90-109.
- Laj, P., S. Fuzzi, M.C. Facchini, G. Orsi, A. Berner, C. Kruisz, W. Wobrock, A. Hallberg, K.N. Bower, M.W. Gallagher, K.M. Beswick, R.N. Colvile, T.W. Choularton, P. Nason, B. Jones, 1997: Experimental evidence for in-cloud production of aerosol sulphate *Atmos. Environ.* Vol. **31** , No. 16 , 2503-2514
- Lefevre R., 2007: Physique de la mesure de la sonde CPI pour la mesure des propriétés des cristaux de glace. Application aux observations réalisées durant la campagne ASTAR 2004. Thèse de l'Université Blaise Pascal, 19 Mars 2007.
- Lelieveld, J. and P. J. Crutzen 1990: Influences of cloud photochemical processes on tropospheric ozone, *Nature*, **343**, 227-233.
- Lelieveld, J. and P. J. Crutzen 1991: The role of clouds in tropospheric photochemistry, *J. Atmos. Chem.*, **12**, 229-227.
- Leriche, M.: Développement d'un modèle de chimie multiphase couple à un modèle de microphysique quasi-spectral : Application à un événement nuageux échantillonné au Puy de Dôme, thèse, Université Blaise Pascal – Clermont II, 2000
- Leriche, M, D. Voisin, N. Chaumerliac, A. Monod, and B. Aumont 2000: A model for tropospheric multiphase chemistry: application to one cloudy event during the CIME experiment. *Atmospheric Environment* **34**, 5015-5036
- Leriche, M., N. Chaumerliac and A. Monod, 2001 : Coupling quasi-spectral microphysics with multiphase chemistry : case study of a polluted air mass at the top of the Puy de Dôme mountain (France), *Atmos. Env.*, **35**, 5411-5423.
- Leriche, M., L. Deguillaume and N. Chaumerliac, 2003: Modeling study of strong acids formation and partitioning in a polluted cloud during wintertime., *Journal of Geophysical Research*, vol **108**, 4433-4444
- Leriche, M., R.L. Curier, L. Deguillaume, D. Caro, K. Sellegri, N. Chaumerliac, 2007: Numerical quantification of sources and phase partitioning of chemical species in cloud: Application to wintertime anthropogenic air masses at the Puy de Dôme station, soumis au *J. Atmos. Chem.*
- Libbrecht, G. K., 2005: The physics of snow crystals. Rep. Prog. Phys. Vol **68** 855-895.
- Lin, Y.L., R. D. Farley and H. D. Orville, 1983: Bulk parametrization of snow field in a cloud model. *J.Climate. Appl. Meteor.*, **22**, 1065-1092.
- Liu, G. S., and J. A. Curry, 1999: Tropical ice water amount and its relations to other atmospheric hydrological parameters as inferred from satellite data. *J. Appl. Meteor.*, **38**, 1182-1194.
- Liu, H-C., P.K. Wang, R.E. Schlesinger, 2003: A Numerical Study of Cirrus Clouds. Part II: Effects of Ambient Temperature, Stability, Radiation, Ice Microphysics, and Microdynamics on Cirrus Evolution *J. Atmos. Sci.*, **60**, 1097-1119.

- Locatelli, J. D., and P.V. Hobbs, 1974: Fallspeeds and masses of solid precipitation particles. *J. Geophys. Res.*, **79**, 2185-2197
- Logager, T. and K. Sehested, 1993: Formation and decay of peroxydic acid: A pulse radiolysis study, *J. Phys. Chem.*, **97**, 10047-10052,.
- Lord, S. J., and J. M. Lord, 1988: Vertical velocity structure in an axisymmetric, nonhydrostatic tropical cyclone model. *J. Atmos. Sci.*, **45**, 1453--1461.
- Madronich, S., and J.G. Calvert, 1990: The NCAR Master Mechanism of the gas phase chemistry. NCAR technical Note, TN-333+SRT, Boulder Colorado .
- Madronich, S., and S. Flocke, 1998: The role of solar radiation in atmospheric chemistry, in : *The Handbook of Environmental photochemistry, Vol. 2: Reactions and Processes*. Part L, O. Hutzinger Ed., Springer-Verlag, New York, pp 1-26.
- Mari, C., D. J. Jacob and P. Bechtold, 2000: Transport and Scavenging of Soluble Gases in a Deep Convective Cloud. *Journal of Geophysical Research* **105**(D17), 22255–22267
- Marshall, J. S., and W. McK. Palmer, 1948: The distribution of raindrops with size. *J. Meteor.*, **5**, 165-166
- Martin, S.T, H.M Hung, A. Malinowski, 2001: Chemistry of cirrus cloud formation. *J. Aerosol Sci.*, **32**, suppl. 1, pp. S925-S926.
- Mason, B.J., 1971: *The physics of clouds*. Oxford University Press, 671 pp.
- Mc Cumber, M., W. K. Tao, R. Simpson, and S. T. Soong, 1991: Comparison of ice-phase microphysical parametrization schemes using numerical simulations of tropical convection. *J. Appl. Meteor.*, **30**, 985-1004.
- Meyers, M.P., R.L. Walko, J.Y. Harrington, and W.R. Cotton, 1997 : New RAMS cloud microphysics parametrization Part II: the two-moment scheme. *Atmospheric Research*, **38**, 29-62
- Meyers, M.P., P.J. DeMott, and W.R. Cotton, 1992: New primary ice-nucleation parametrization in an explicit cloud model. *J. Appl. Meteor.*, **31**, 708-721.
- Milbrandt, J.A., and M. K. Yau, 2005a: A multimoment bulk microphysics parametrization. Part I: Analysis of the role of the spectral shape parameter . *American Meteorological Society*, Vol **62**, 3051-3064
- Milbrandt, J.A., and M. K. Yau, 2005b: A multimoment bulk microphysics parametrization. Part II: A proposed three-moment closure and scheme description. *American Meteorological Society*, Vol **62**, 3065-3081
- Miller, N.L., P.K. Wang, 1989: Theoretical determination of the efficiency of aerosol particle collection by falling columnar ice crystals. *J. Atm. Sci.*, **46**, 1662-1663
- Minnis, P. et D. F. Young 2000 : Cloud microphysical properties derived from geostationary satellite data. In *Proceedings of EUMETSAT meteorological satellite data users' conference 2000*, Bologna, Italy.
- Mitra, S. K., S. Barth, and H. R. Pruppacher, 1990: A laboratory study on the scavenging of SO<sub>2</sub> by snow crystals, *Atmos. Environ.*, **24A**, 2307–2312.
- Mizuno, H., 1990: Parametrization of the accretion process between different precipitation elements. *J. Met. Soc. Japan*, **68**, 395-398
- Murakami, M. 1990. Numerical modelling of a dynamical and microphysical evolution of an isolated convective cloud the 19 July 1981 CCOPE cloud. *J. Meteorol. Soc. Jpn*, **68**, 107-128
- Noone, K.J., R.J. Charlson, D.S. Covert, J.A. Ogren and J. Heintzenberg 1988: Design and calibration of a counterflow virtual impactor for sampling of atmospheric fog and cloud droplets, *Aerosol Sci. Technol.*, **8**, 235-244.
- Orville, H.D., and F. J. Kopp, 1977: Numerical simulation of the life history of a hailstorm. *J. Atmos. Sci.*, **34**, 1596-1618
- Pandis, S.N., and J.H. Seinfeld, 1998 : *Atmosph ric chemistry and physics*. Willey, New York
- Passarelli, R. E. Jr., 1978: An approximate analytical model of the vapour deposition and aggregation growth of snowflakes. *J. Atmos. Sci.*, **35**, 118-124

- Pfann, W. G., 1966. *Zone Melting*, 310 pp., John Wiley, New York.
- Prodi F., and R.G. Oraltay, 1991: Scavenging of aerosol particles by growing and evaporating ice crystals : assessing the role of competitive processes. In *Precipitation Scavenging and Atmosphere-surface exchange* (ed. Schwartz et Slinn), pp 75-86.
- Pruppacher, H. R., and D. J. Klett, 1978: *Microphysics of clouds and precipitation*. Reidel, 714
- Pruppacher, H. R. 1995: A new look at homogeneous ice nucleation in supercooled water drops. *J. of Atmos. Sci.*, **45**:1924-1933.
- Rasmussen, R., M. Dixon, F. Hage, J. Cole, C. Wade, J. Tuttle, S. McGettigan, T. Carty, L. Stevenson, W. Fellner, S. Knight, E. Karplus, N. Rehak, 2001: Weather Support to Deicing Decision Making (WSDDM): A Winter Weather Nowcasting System. *Bull. Amer. Meteor. Soc.* **82**, 579-596.
- Reisner, J., R. M. Rasmussen, and R. T. Bruintjes, 1998: Explicit forecasting of supercooled liquid water in winter storms using the MM5 mesoscale model. *Q.J.R. Meteorol. Soc.*, **124**, 1071-1107
- Richard, E., J.P. Pinty and N. Chaumerliac, 1984 : Numerical simulation of orographic enhancement of rain with a mesoscale model, *J. Climate Appl. Meteor.*, **26**, 661-669.
- Richard, E. and N. Chaumerliac, 1989: Effects of different parametrizations on the simulation of mesoscale orographic precipitation, *J. Appl. Meteor.*, **28**, 1197-1212.
- Rutledge, S. A., D.A. Hegg and P.V. Hobbs, 1986: A numerical model for sulfur and nitrogen scavenging in narrow cold-frontal rainbands 1. Model description and discussion of microphysical fields. *Journal of Geophysical Research*, **91**(D13): 14385-14402.
- Rutledge, S. A. and Hobbs, P. V. 1983. The mesoscale and microscale structure and organization of clouds and precipitation in midlatitude cyclones. Part VIII: A model for the 'seeder-feeder' process in warm-frontal rainbands. *J. Atmos. Sci.*, **40**, 1185-1206
- Rutledge, S. A. and Hobbs, P. V. 1984. The mesoscale and microscale structure and organization of clouds and precipitation in midlatitude cyclones. Part XII: A diagnostic modelling study of precipitation development in narrow cold-frontal rainbands. *J. Atmos. Sci.*, **41**, 2949-2972
- Sanders, R., 1999: Compilation of Henry's low constants for inorganic and organic species of potential importance in environmental chemistry (Version 3), <http://www.mpch-mainz.mpg.de/~sanders/res/henry.html>,.
- Schiller, C, A. Afchine, N. Eicke, C. Feigl, H. Fischer, A. Giez, P. Konopka, H. Schaller, F. Tuetjer, FG Wienhold and M. Zoeger, 1999: Ice particle formation and sedimentation in the tropopause region: a case study based on in situ measurements of total water during POLSTAR 1997. *Geophys. Res. Lett.*, **26**, 14, 2219-2222.
- Schwartz, S.E.: Mass-Transport considerations pertinent to aqueous phase reactions of gases in liquid water cloud, in: Chemistry of Multiphase Atmospheric Systems, Jaeschke, W; Eds., NATO ASI Series, G6, Springer-Verlag, pp. 415-471, 1986.
- Seifert A. and K. D. Beheng 2006: A two-moment cloud microphysics parameterization for mixed-phase clouds. Part 1: Model description *Meteorol Atmos Phys* **92**, 45–66
- Seifert A. and K. D. Beheng 2006 : A two-moment cloud microphysics parameterization for mixed-phase clouds. Part 2: Maritime vs. continental *Meteorol Atmos Phys* **92**, 67–82. deep convective storms
- Sigg, A., T. Staffelbach, and A. Neftel, 1992: Gas phase measurements of hydrogen peroxide in Greenland and their meaning for the interpretation of H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> records in ice cores, *J. Atmos. Chem.*, **14**, 223–232.
- Simpson, J, G. W. Brier and R.H. Simpson, 1967: Stormfury Cumulus Seeding Experiment 1965: Statistical Analysis and Main Results. *J. Atmos. Sci.*, **24**, 508–521.
- Sommerfeld, R. A., and D. Lamb, 1986: Preliminary measurements of SO<sub>2</sub> adsorbed on ice, *Geophys. Res. Lett.*, **13**, 349–351.
- Sommerfeld, R. A., C. A. Knight and S. K. Laird, 1998: Diffusion of HNO<sub>3</sub> in ice, *Geophys. Res. Lett.*, **25**, 935–938,

- Song, N., and D. Lamb, 1992: Aerosol Scavenging by ice in supercooled Clouds. In *Precipitation Scavenging and Atmosphere-surface exchange* (ed. Schwartz et Slinn), pp 63-74.
- Sorooshian, A., V. Varutbangkul, F. J. Brechtel, B. Ervens, G. Feingold, R. Bahreini, S. M. Murphy, J. S. Holloway, E. L. Atlas, G. Buzorius, H. Jonsson, R. C. Flagan and J. H. Seinfeld, 2006: Oxalic acid in clear and cloudy atmospheres: Analysis of data from International Consortium for Atmospheric Research on Transport and Transformation 2004, *J. Geophys. Res.* **111**, D23S45, doi:10.1029/2005JD006880.
- Snider, J. R., D. C. Montague, and G. Vali, 1992: Hydrogen peroxide retention in rime ice, *J. Geophys. Res.*, **97**(D7), 7569–7578.
- Snider, J. R., and J. Huang, 1998: Factors influencing the retention of hydrogen peroxide and molecular oxygen in rime ice, *J. Geophys. Res.*, **103**(D1), 1405–1415,
- Starr, D. O'C. and S. K. Cox, 1985: Cirrus clouds. Part I: A cirrus cloud model. *J. Atmos. Sci.*, **42**, 2663-2681.
- Stuart, L. A. and M. Z. Jacobson, 2003: A timescale investigation of volatile chemical retention during hydrometeor freezing: Nonrime freezing and dry growth riming without spreading. *Journal of Geophysical Research*, **108**, 4178-4209
- Stuart, L. A. and M. Z. Jacobson, 2006: A numerical model of the partitioning of trace chemical solutes during drop freezing. *Journal of Atmospheric Chemistry*, **53**, 13-42
- Sun, A., H.-Y. Chun, J.-J. Baik, M. Yan, 2002: Influence of electrification on microphysical and dynamical processes in a numerically simulated thunderstorm. *J. Appl. Meteor.*, **41**, 1112-1127.
- Tao, W. -K., and J. Simpson, 1993: The Goddard Cumulus Ensemble Model. Part I: Model description. *Terr., Atmos. Oceanic Sci.*, **4**, 35-72.
- Tao, W-K., 2003: Goddard Cumulus Ensemble (GCE) Model: Application for Understanding Precipitation Processes. *Meteorological Monographs*, 29, No. 51, pp. 107–107.
- Thibert, E., 1996: Thermodynamique et cinétique des solutions solides HCl-H<sub>2</sub>O et HNO<sub>3</sub>-H<sub>2</sub>O; Implications atmosphériques. Thèse de doctorat de l'Université Joseph Fourier- Grenoble I.
- Thibert, E., and F. Dominé, 1997: Thermodynamics and Kinetics of the solid solution of HCl in Ice. *J. of Phys. Chem. B*, **101**(B18), 3554-3565.
- Thibert, E., and F. Dominé, 1998: Thermodynamics and kinetics of the solid solution of HNO in ice, *J. Phys. Chem. B*, **102**, 4432–4439.
- Thompson, G., R. M. Rasmussen, and K. Manning, 2004: Explicit forecasts of winter precipitations using an improved bulked microphysics scheme. Part I: Description and sensitivity analysis. *Monthly Weather Review*, vol **132**, 519-542
- Thompson, G., P. Field, B. Hall, and R. Rasmussen, 2006: A New Bulk Microphysical Parameterization in WRF. 7th WRF Users' Workshop, Boulder CO, June 2006.
- Thorpe, A. D., and B. J. Mason, 1966: The evaporation of ice spheres and ice crystal. *Brit. J. Appl. Phys.*, **17**, 541-551
- Tinsley, B., and R. Heelis, 1993: Correlations of atmospheric dynamics with solar activity: Evidence for a connection via the solar wind, atmospheric electricity, and cloud microphysics. *J. Geophys. Res.*, **98**, 10375-10384.
- Tinsley, B.A., R.P. Rohrbaugh, and M. Hei, 2001: Electroscavenging in clouds with broad droplet size distributions and weak electrification. *Atmos. Res.*, **59-60**, 115-135.
- Toon, O.B., C.P. McKay, T.P. Ackerman and K. Santhanam, 1989: Rapid calculation of radiative heating rates and photodissociation rates in inhomogeneous multiple scattering atmospheres. *J. Geophys. Res.*, **94**, D13, 16287-16301.
- Tripoli, G. J., P. J. Flatau, W. R. Cotton, 1988: Generalized microphysics scheme for use in mesoscale cloud model. *Reprints 10<sup>th</sup> International Cloud Physics Conference*. Bad-Homburg. FRG August, 1988, 109-111
- Ulbrich, C. W., 1983: Natural Variations in the analytical form of the raindrop size distribution. *J. Climate Appl. Meteor.*, **22**, 1764-1775.

## Bibliographie

- Ullerstam, M and J. P. D. Abbatt, 2005: Burial of gas-phase HNO<sub>3</sub> by growing ice surfaces under tropospheric conditions. *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **7**, 3596 – 3600
- Valdez, M. P., G. A. Dawson, and R. C. Bales, 1989: Sulfur dioxide incorporation into ice depositing from the vapour, *J. Geophys. Res.*, **94**, 1095-1103.
- Voisin, D.: Composition chimique détaillée du nuage mixte: Etude in situ des mécanismes d'incorporation d'acides forts et faibles dans la précipitation solide, thèse, Université Joseph Fourier Grenoble I, 1998.
- Voisin, D., and M. Legrand. 2000: Scavenging of acidic gases (HCOOH, CH<sub>3</sub>COOH, HNO<sub>3</sub>, HCL, and SO<sub>2</sub>) and ammonia in mixed liquid-solid water clouds at the Puy de Dôme mountain (France). *Journal of geophysical research*, **105**, 6817-6835
- Walko, R.L., W.R. Cotton, M.P. Meyers, and J.Y. Harrington, 1995: New RAMS cloud microphysics parametrization Part I: the single moment scheme. *Atmospheric Research*, **38**, 29-62
- Wang, C. and J.S. Chang, 1993: A three-dimensional numerical model of cloud dynamics, microphysics, and chemistry 4. Cloud chemistry and precipitation chemistry. *Journal of Geophysical Research*, **98**(D9): 16799-16808.
- Warneck, P., 2000: Chemistry of the natural atmosphere, International Geophysics Series, Vol. 71, Academic Press, 927 pp.
- Whitby, K. T., 1978: The physical characteristics of sulphur aerosols, *Atmos. Environ.*, **12**, 135-159
- Williams, J.E., F.J. Dentener and A.R. van den Berg, 2002: The influence of cloud chemistry on HO<sub>x</sub> and NO<sub>x</sub> in the moderately polluted marine boundary layer: a 1-D modelling study, *Atmos. Chem. Phys.*, **2**, 277-302.
- Willis, P. T., J. Hallett, R. A. Black, and W. Hendricks, 1994: An aircraft study of rapid precipitation development and electrification in a growing convective cloud. *Atmos. Res.*, **33**, 1–24.
- Willoughby, H.E., D.P. Jorgensen, R.A. Black, S.L. Rosenthal, 1985: Project STORMFURY: A Scientific Chronicle 1962–1983. *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, **66**, 505–514
- Wisner, C., H.D. Orville, and C. Myers, 1972: A numerical model of hail-bearing cloud *J. Atmos. Sci.*, **29**, 1160-1181
- Yin, Y., K.S. Carslaw and D.J. Parker, 2002. Redistribution of trace gases by convective clouds mixed-phase processes. *Atmos. Chem. Phys.*, **2**, 293-306
- Yin, Y., K.S Carslaw, and G. Feingold 2005: Vertical transport of aerosols in a mixed-phase convective cloud and the feedback on cloud development, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, **131**, 221-245.
- Zhang, D. L., 1989: The effect of parametrized ice microphysics on the simulation of vortex circulation with a mesoscale hydrostatic model. *Tellus*, **41A**, 132-147.
- Ziegler, C. L., 1985: Retrieval of thermal and microphysical variables in observed convective storms. Part I: Model development and preliminary testing. *J. Atmos. Sci.*, **42**, 1487-1509.





## Liste des figures

Figure 1 : Distribution tri modale des aérosols atmosphériques, d'après Whitby, 1978. ....	8
Figure 2 : Classification des types de cristaux de glace selon Mason. (1971). ....	10
Figure 3 : Les trois types de croissance d'un cristal hexagonal, d'après Delanoë, 2005 (Delanoë, pp 25 chap II.) ....	12
Figure 4 : Forme des cristaux de glace en fonction de la température et de la sursaturation. Libbrecht, 2005 adapté de Furakawa. ....	12
Figure 5 : Forme observée des hydrométéores en fonction de la température. Lefevre, 2007. ....	13
Figure 6 : Les principaux types de nuages et leur altitude. ....	14
Figure 7 : Courbes de Köhler : Variation de la sursaturation en fonction du rayon pour des gouttelettes de solution formées à partir d'un noyau de sulfate d'ammonium ((NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> ) de rayon sec valant 25 nm, nécessitant la sursaturation la plus élevée, 50 nm, 75 nm, 100 nm et 125 nm, nécessitant une sursaturation moindre . (Guibert. 2002). ....	18
Figure 8 : Nombre de cristaux formés par nucléation hétérogène de la glace nuageuse selon Fletcher. (1962), Cooper. (1986) et Meyers et al. (1992), en fonction de la température. ....	19
Figure 9 : Représentation graphique des termes de l'équation de collection continue. ....	22
Figure 10: Résumé des interactions entre les différents types d'hydrométéores dans un nuage mixte. ....	24
Figure 11: Valeurs de constantes de Henry pour quelques espèces d'intérêt troposphérique, d'après Sanders. (1999). ....	26
Figure 12 : Processus physico-chimiques du transfert air/gouttelettes pour une gouttelette de rayon a. ....	27
Figure 13: Processus physico-chimiques limitants du transfert air/gouttelettes pour une gouttelette de rayon a. ....	28
Figure 14 : Redistribution des gaz par les processus de croissance des cristaux dans un nuage mixte. D'après Yin et al. (2002). ....	32
Figure 15 : Distributions gamma pour $v = 1$ à 10. ....	45
Figure 16 : Distributions normalisées gamma ( $v = 4$ ) et lognormale pour un même diamètre moyen. ....	45
Figure 17 : Distribution gamma ( $v=4$ ), et quelques grandeurs associées. ....	50
Figure 18: Efficacité du mécanisme de production de glace nuageuse par givrage des gouttelettes sur la neige et la neige roulée en fonction de la température selon Hallet et Mossop (1974). ..	66
Figure 19 : Mécanismes microphysiques d'échanges pour les rapports de mélange. ....	69
Figure 20 : Mécanismes microphysiques d'échanges pour les contenus en nombre. ....	70
Figure 21 : Organigramme du code de chimie multiphase de M2C2. ....	73
Figure 22 : Méthode d'établissement du schéma chimique de M2C2. ....	74
Figure 23 : Concentration en ozone : M2C2 et Barth et al., 2003. ....	75
Figure 24: Bilan des radicaux OH et HO <sub>2</sub> en zone rurale, d'après Buisson (1999). ....	76
Figure 25 : Concentration en NO <sub>x</sub> (NO, NO <sub>2</sub> ) : M2C2 et Barth et al., 2003. ....	76
Figure 26: Ozone total, M2C2 et Barth et al., 2003. ....	77
Figure 27: NO <sub>x</sub> (NO, NO <sub>2</sub> ) total, M2C2 et Barth et al., 2003. ....	77
Figure 28 : Évolution des humidités relatives par rapport à l'eau (bleu ciel) et par rapport à la glace (bleu foncé) pour des simulations avec une température finale de -25°C (trait plein) et de -13°C (trait pointillé). ....	86
Figure 29 : Distributions en nombre des aérosols maritimes, selon Jaenicke et al. (1988). ....	87
Figure 30 : Distributions volumique des aérosols maritimes selon Jaenicke et al. (1988). ....	87
Figure 31 : Distribution en nombre des aérosols continentaux selon Jaenicke (1993). ....	88
Figure 32 : Distribution volumique des aérosols de type continentaux selon Jaenicke (1993). ....	89

## Liste des figures

Figure 33 : Évolution des rapports de mélange, schéma à un moment pour la neige et la neige roulée.....	93
Figure 34: Évolution des diamètres moyens des hydrométéores, schéma à un moment pour la neige et la neige roulée. ....	93
Figure 35 : Évolution du contenu en nombre, schéma à un moment pour la neige et la neige roulée. ....	94
Figure 36 : Évolution des rapports de mélange durant la simulation de référence .....	95
Figure 37 : Évolution du contenu en nombre, simulation de référence. ....	96
Figure 38 : Évolution des diamètres moyens, simulation de référence.....	96
Figure 39 : Évolution des rapports de mélange durant la simulation d'un nuage type continental. .	98
Figure 40 : Évolution du contenu en nombre durant la simulation d'un nuage type continental. ....	98
Figure 41 : Taux de production/destruction de la glace nuageuse en nombre, simulation de référence. ....	99
Figure 42 : Taux de production/destruction de la glace nuageuse en nombre, simulation continentale. ....	99
Figure 43 : Taux de production/destruction de la neige en nombre, simulation de référence. ....	100
Figure 44 : Taux de production/destruction de la neige en nombre, simulation continentale. ....	100
Figure 45 : Évolution des rapports de mélange, simulation cristaux complexes. ....	101
Figure 46 : Évolution des contenus en nombre, simulation cristaux complexes. ....	101
Figure 47 : Évolution des masses moyennes des différents types d'hydrométéores, en trait plein pour la simulation de référence et en trait pointillé pour la simulation cristaux complexes..	102
Figure 48 : Évolution du pH en fonction du diamètre des gouttelettes, pour les simulations 'référence' et 'sans glace', l'évolution temporelle est indiquée par les flèches.....	105
Figure 49 : Évolution du spectre en nombre des gouttelettes nuageuses en fonction du temps, simulation sans glace.....	105
Figure 50 : Évolution du spectre en nombre des gouttelettes nuageuses en fonction du temps, cas mixte.....	106
Figure 51 : Évolution du pH des gouttelettes en fonction du diamètre, nuage maritime (bleu ciel) et continental (bleu foncé).....	107
Figure 52 : Évolution du pH des gouttelettes, simulation de référence et simulation cristaux complexes.....	108
Figure 53 : Évolution des concentrations en acide nitrique dans la phase gazeuse (gauche) et dans les gouttelettes (droite) pour la simulation de référence et la simulation sans glace. ....	109
Figure 54 : Facteur ou coefficient de répartition entre la phase aqueuse et la phase gazeuse pour l'acide nitrique pour la simulation de référence et la simulation sans glace. ....	109
Figure 55 : Évolution des taux de production majoritaires d'acide nitrique en phase aqueuse, en trait plein pour la simulation de référence et en trait pointillé pour la simulation sans glace. En bleu, le transfert depuis la phase gazeuse.....	111
Figure 56 : Évolution des taux de production majoritaires d'acide nitrique en phase gazeuse pour la simulation de référence en trait plein et pour la simulation sans glace en trait pointillé. ....	112
Figure 57 : Évolution des concentrations gazeuses de quelques espèces clés pour l'acide nitrique, simulation de référence et la simulation sans glace. ....	112
Figure 58 : Évolution des concentrations gazeuses de l'acide sulfurique pour la simulation de référence et la simulation sans glace. ....	113
Figure 59 : Concentrations en phase aqueuse de l'acide sulfurique (molécule/cm <sup>3</sup> d'air) pour la simulation de référence et la simulation sans glace. ....	114
Figure 60 : Coefficients de répartition entre la phase gazeuse et aqueuse pour l'acide sulfurique des simulations mixte et chaude .....	115
Figure 61 : Évolution du taux de production majoritaire de l'acide sulfurique en phase gazeuse pour la simulation de référence et la simulation sans glace. ....	115

## Liste des figures

Figure 62 : Taux de production prépondérants en $\text{H}_2\text{SO}_4$ dans la phase aqueuse, nuage mixte (trait plein) et sans glace (pointillées).....	116
Figure 63 : Évolution comparé du dégazage lors des phénomènes de givrage et de la concentration gazeuse en acide sulfurique pour la simulation en phase mixte de référence.....	117
Figure 64 : Évolution de la concentration gazeuse en acide formique pour la simulation de référence et la simulation sans glace.....	118
Figure 65 : Évolution de la concentration aqueuse en acide formique (molécule/ $\text{cm}^3$ d'air) pour la simulation de référence et la simulation sans glace.....	118
Figure 66 : Évolution des taux chimiques prépondérants de l'acide formique en phase gazeuse pour la simulation de référence (trait pleins), et la simulation sans glace (pointillés).....	119
Figure 67 : Évolution des taux chimiques prépondérants de l'acide formique en phase aqueuse pour la simulation de référence, et la simulation sans glace.....	120
Figure 68 : Taux de dégazage de l'acide formique des simulations mixtes pour la simulation de référence et la simulation cristaux complexes.....	121
Figure 69 : Coefficient de répartition entre les phase gazeuse et aqueuses pour l'acide formique, simulation de référence et simulation sans glace.....	122
Figure 70 : Taux microphysiques prépondérants pour l'eau nuageuse, simulation mixte de référence.....	123
Figure 71 : Évolution de la concentration en phase gazeuse du radical OH pour la simulation de référence et la simulation sans glace.....	123
Figure 72 : Évolution des concentrations du radical OH en phase aqueuse (molécules/ $\text{cm}^3$ d'air) pour la simulation de référence et la simulation sans glace.....	124
Figure 73 : Dégazage du radical OH dû au givrage de l'eau nuageuse pour la simulation de référence.....	124
Figure 74 : Évolution des taux prépondérants chimiques du radical OH en phase gazeuse pour la simulation de référence, et la simulation sans glace.....	125
Figure 75 : Évolution des taux chimiques prépondérants de production (à gauche) et de destruction (à droite) du radical OH en phase aqueuse pour la simulation de référence (traits pleins), et la simulation sans glace (traits pointillés).....	126
Figure 76 : Évolution temporelle de la concentration totale en acide nitrique, simulation de référence, avec rétention fixée à 1 et 0.....	128
Figure 77 : Idem figure (76), mais avec une masse d'air continentale.....	128
Figure 78 : Évolution temporelle de la concentration totale en dioxyde de soufre, simulation de référence, avec rétention fixée à 1 et à environ 0,02 suivant la paramétrisation de Lamb et Blumenstein (1987). Échelle logarithmique.....	129
Figure 79 : Évolution temporelle de la concentration totale en $\text{NO}_x$ , simulation de référence, avec rétention fixée à 1 et 0.....	129
Figure 80 : Effet des valeurs du coefficient de rétention et de la constante de Henry effective sur l'évolution de la concentration totales de quelques espèces chimiques, simulation de référence.....	131
Figure 81 : Évolution de la concentration totale en dioxyde de soufre dans les gouttelettes pour la simulation de référence (burial=1) et burial=0.....	131
Figure 82 : Vitesse de chute des gouttes de pluie en fonction de leur diamètre pour une représentation du spectre des gouttes de pluie par une distribution log-normale et par une distribution gamma généralisée.....	138
Figure 83 : Evolution du contenu en eau de pluie par autoconversion et accréction gamma et log-normale.....	139
Figure 84 : Evolution de la concentration en nombre des gouttes de pluie pour les distributions gamma et lognormale avec l'autoconversion et l'accréction.....	140

## Liste des figures

Figure 85 : taux d'accrétion divisé par le contenu en eau nuageuse en fonction du rapport de mélange en eau de pluie avec la distribution gamma. ....	140
Figure 86 : contenu en eau de pluie par autoconversion, accrétion et autocollection (distributions gamma et log-normale). ....	141
Figure 87 Effet du paramètre de forme $v$ sur la taille des gouttes de pluie avec autoconversion et l'évaporation .....	143
Figure 88 : évolution du rapport de mélange avec tous les mécanismes activés, gamma et lognormale.....	144
Figure 89 : Taux de sédimentation comparé entre gamma et lognormale. ....	144

## Liste des tableaux

Tableau 1 : Coefficients de rétention utilisés dans la littérature. ....	36
Tableau 2 : Valeurs des coefficients a, b, c et d couramment utilisés dans les paramétrisations microphysiques des modèles quasi spectraux et valeurs utilisées dans M2C2. ....	47
Tableau 3 : Valeurs des Facteurs de ventilation et des capacitances utilisées dans M2C2. ....	54
Tableau 4 : Efficacités de collection entre différents types d'hydrométéores dans M2C2. ....	55
Tableau 5 : Coefficients de rétention tel que $RET=a+b(T_0-T)$ avec $T_0=273\text{ K}$ ....	78
Tableau 6 : Caractéristiques physico-chimiques des spectres d'aérosols pour le cas maritime, d'après Jaenicke. (1988). ....	86
Tableau 7 : idem tableau 6, cas continental d'après Jaenicke (1993). ....	88
Tableau 8 : Concentration initiales des espèces chimiques dans la phase gazeuse en fonction de la nature de la masse d'air. ....	89
Tableau 9 : Fractions massiques des espèces solubles pour chacun des trois modes des aérosols maritimes et continentaux. ....	90
Tableau 10 : Concentrations initiales des gouttelettes nuageuses obtenues à partir de la fraction massique des espèces solubles provenant de l'activation des aérosols pour les masses d'air maritime et continentale. ....	90
Tableau 11 : Résumé des paramètres servant à caractériser la pluie et chaque catégorie de glace. ....	91
Tableau 12 : Présentation de la simulation de référence et autres choix possibles dans M2C2 .....	92
Tableau 13 : Maxima (nombre et rapport de mélange) obtenus par Thompson et al. (2004) pour la simulation CONTROL et avec M2C2 pour la simulation de référence. ....	97



---

## **Paramétrisation des processus physico-chimiques de formation des nuages et étude de leurs impacts sur l'évolution de la composition chimique atmosphérique.**

### **RESUME**

Ce travail porte sur le développement d'un module microphysique de nuages liquides et glacés dans un modèle de chimie multiphase (Leriche et al., 2001). Le modèle complet a été appliqué afin d'évaluer le rôle de ces nuages sur les teneurs en polluants atmosphériques. Les nuages modulent le transport horizontal et vertical des polluants ainsi que leur lessivage via les précipitations, ils sont aussi le siège de réactions chimiques complexes. En paramétrisant la répartition des polluants entre les différentes phases du nuage via des processus comme le givrage, la croissance des cristaux par dépôt de vapeur, la fonte et la collection des hydrométéores, il est montré l'importance de la phase glace et de la morphologie des cristaux dans l'évolution chimique du nuage. Des scénarios de formation nuageuse sont définis à partir de masses d'air continentale et/ou marine, pour voir l'influence de la capacité du nuage à précipiter sur la composition chimique des hydrométéores. Des tests sur la rétention et l'enfouissement pilotant les échanges avec la phase glacée lors du givrage et de la croissance par dépôt de vapeur respectivement ont été menés pour conclure au rôle majeur joué par la glace dans le bilan des espèces traces.

Mots-clés : chimie troposphérique multiphase, rétention dans la glace, modélisation.

---

## **Modeling physicochemical processes involved in cloud formation to study their impacts on the evolution of atmospheric chemical composition.**

### **ABSTRACT**

This work deals with the development of mixed phase cloud microphysics in the frame of a multiphase cloud chemistry model (Leriche et al., 2001). The coupled model is then applied to evaluate the role of this type of clouds on atmospheric species concentrations. Clouds are good transport vectors for pollutants, they scavenge them through precipitation and they also host complex chemical reactions. Through the parameterization of pollutants partition among the various cloud phases via riming, crystal growth by vapour deposition, melting and collection processes, the importance of ice phase and of crystal habit for the cloud chemical composition is demonstrated. Various air masses are simulated to form the clouds to assess the influence of cloud precipitation efficiency on their chemical composition. Tests on the ice retention and the burial during riming and crystal growth by vapour deposition respectively are realized to conclude in favour of the major role of ice phase in the trace compounds budget.

Key words : tropospheric multiphase chemistry, ice retention, numerical modelling.

---

**Thèse présentée par François CHAMPEAU à l'Université Blaise Pascal (Clermont II)  
le 23 mai 2007 pour l'obtention du titre de Docteur en Physique de l'Atmosphère**